



TITLE:

量子井戸のサブバンド間遷移の短波長化と超高速光制御光変調に関する研究(Dissertation_全文)

AUTHOR(S):

浅野, 卓

CITATION:

浅野, 卓. 量子井戸のサブバンド間遷移の短波長化と超高速光制御光変調に関する研究. 京都大学, 1998, 博士(工学)

ISSUE DATE:

1998-03-23

URL:

<https://doi.org/10.11501/3135508>

RIGHT:

新 制
工
1108

量子井戸のサブバンド間遷移の短波長化と
超高速光制御光変調に関する研究

浅野 卓

量子井戸のサブバンド間遷移の短波長化と
超高速光制御光変調に関する研究

1998 年 1 月

浅野 卓

目 次

第 1 章 序論	1
A 研究の背景	1
B 本論文の構成	4
第 2 章 サブバンド間遷移を用いた光制御光変調の自由電子レーザによる検証	9
A はじめに	9
B 変調原理	9
C 理論的検討	11
D 変調動作の検証	14
D-1 試料	14
D-2 測定系	15
D-3 実験結果および考察	17
E まとめ	21
第 3 章 サブバンド間遷移短波長化のための材料選択・構造設計 および成長条件の検討	23
A はじめに	23
B 材料選択	24
B-1 短波長化の方法	24
B-2 材料系の検討	25
C 構造設計	27
C-1 バンド非放物線性と歪	27
C-2 構造作製中に生じる In の偏析	28
C-3 計算の流れ	30
C-4 計算結果および考察	31
D 構造作製	38
D-1 成長方法	38

D-2	成長条件	41
E	まとめ	45
第4章	GaAs 基板上 InGaAs/AlAs 量子井戸による サブバンド間遷移の短波長化	51
A	はじめに	51
B	試料構造および測定方法	51
B-1	試料	51
B-2	測定系	53
C	測定結果および考察	57
C-1	サブバンド間吸収スペクトル	57
C-2	サブバンド間遷移エネルギー	59
C-3	偏光特性	61
C-4	吸収半値幅	63
D	まとめ	66
第5章	短波長化サブバンド間遷移における吸収強度の増大化	71
A	はじめに	71
B	吸収強度の評価方法	71
C	吸収強度減少の理由	73
C-1	積分吸収量	73
C-2	計算方法	75
C-3	計算結果	77
D	吸収強度の増大化	78
D-1	成長温度の低減	78
D-2	Si 添加密度の増加	79
D-3	井戸構造の再設計	81
E	まとめ	88
第6章	短波長化サブバンド間遷移における電子励起の超高速緩和特性	91
A	はじめに	91

B	エネルギー緩和時間	93
B-1	ポンプ&プローブ法の原理	93
B-2	測定系	95
B-3	測定結果および考察	100
B-4	まとめ	120
C	位相緩和時間	120
C-1	実験的検討	122
C-2	理論的検討	129
C-3	まとめ	134
D	まとめ	135
第7章	結論	139
	謝辞	145
	研究業績	147

第1章 序論

A 研究の背景

1970 年の半導体レーザー(laser)の室温連続発振と、低損失光ファイバ(fiber)の出現以来、光通信技術は急速な進歩を遂げてきた。いまや情報通信ネットワークは最も重要な社会基盤の一つであり、高速かつ安価な情報通信手段の提供は、今後の産業発展の行く末を握る鍵の一つといえる。そのためには (a)各家庭に高速の通信回線を提供するための技術、および(b)超高速の幹線系通信回線を実現するための技術、の 2 つの異なる性質の技術開発が必要となる。光ファイバーの各家庭への敷設による大容量回線の提供自体は既存の技術で対応可能であるが、今後、価格低減のための様々な努力が必要となると考えられる。また、個々の加入者回線の容量増大に伴い、幹線系統に必要とされる通信容量は急速に非常に増大しつつあり、すでに現在、実用システムにおいて通信速度 10Gbps の高速通信技術が導入され始めている。これは、半導体レーザー光の電気-光外部変調器による変調、エルビニウム・ドープファイバーを用いたファイバー光増幅器による中継および超高速 IC による制御技術を中心としたシステムである。しかしながら、さらに大きな通信容量が必要とされた場合、もはや電気的な変調方式のみに頼ってはいは、外部駆動回路あるいは電気光学変調素子自身の抵抗・容量積時定数の制約のため、10Gbps を大幅に超える変調速度を得ることは困難と考えられている。そして、現在の情報革命の急速な進展状況を見るにつけ、将来的にこの制限がボトルネックとなることは間違いないと思われる。

このような限界を打破するため、光の物理的性質をより積極的に利用して光ファイバー自身の Tbps を超える潜在的伝送容量を有効に用いるための研究が近年盛んになりつつあり、具体的には、(a) 光ファイバーの零分散波長付近で 1nm 程度の間隔を持つ波長の異なる多数の搬送光を用いて伝送容量を増大させる波長多重方式、(b)ピコ秒程度の極短パルスを時間軸に沿って詰め込んで伝送容量を増大させ、外部電気回路を必要としない超高速光-光直接変調(ゲート)素子を用いてそれを分離する時間多重方式等が詳しく検討されつつある。波長多重方式は波長選択フィルター等の受動デバイスによって信号を分離できる利点があり、様々な問題点は存在するがおおむね既

存の技術の改良で対応できると考えられている。これに対して、時間多重方式の実現にはモードロックレーザー等の安定した極短光パルスを発生させる技術および時間軸に沿ってピコ秒レベルで詰め込まれた極短光パルス列を分離するための超高速全光クロック抽出および光制御光変調(ゲート)等のより高度な技術が必要とされる。^{1,2)}このような状況から、今後の展望としては、まず短期的には波長多重方式が実用化されるが、より長期的には各波長の信号に時間多重方式を導入して通信容量をさらに増大させる必要が生じてくると考えられる。

時間多重方式で最も重要な課題の一つは上述の超高速光制御光変調(ゲート)デバイスの実現である。このような光制御光変調の実現は、制御光によって物質中の電子系を励起し、電子系の励起による信号光に対する吸収係数および屈折率の変化を利用する、つまり光非線形効果を利用することで可能と考えられる。この場合、電氣的外部制御回路がないため介在する電子励起の緩和時間そのものの応答が期待でき、緩和時間の非常に速い系を用いれば光による光の超高速の制御が可能になる。ここで、半導体材料中の電子遷移は種々の作製技術の発達により超薄膜および混晶等を利用した高度な制御が可能のため、高速の緩和時間を持つように人工的に制御することができる可能性がある。本研究で検討する半導体量子井戸におけるサブバンド間遷移(励起)³⁾はその一例である。サブバンド間遷移とは、半導体量子井戸において井戸ポテンシャルの存在により一つのバンドから複数に分裂したエネルギー準位、すなわちサブバンドの間で生じるバンド内遷移である。サブバンド間遷移では、本質的に高速な過程である縦形光学(LO)フォノンの放出による緩和過程が存在するため、理論的にピコ秒程度という非常に短い時間で励起された電子が基底状態に緩和し得るという特長をもつ。

4.6)

本研究で検討する変調方式では、n型量子井戸において、伝導帯第1-第2サブバンド間に共鳴した光(制御光)の照射による電子のサブバンド間励起に伴って、価電子帯から伝導帯へのバンド間に共鳴した光(信号光)に対する吸収係数および屈折率が変化する光非線形現象を利用する。制御光によってサブバンド間励起された電子は、上述のようにピコ秒程度で基底状態まで緩和するので、バンド間光の超高速制御が可能

と考えられる。⁷⁻¹⁰⁾ 最近では、超高速光制御光変調の実現方法として、このサブバンド間遷移だけでなく、やはり超高速の緩和時間を示す半導体量子井戸における電子スピン偏光遷移^{11,12)}および、Be をドープして低温で成長することにより励起キャリアの寿命を極度に低下させた量子井戸のバンド間遷移を用いる方法^{13,14)}等も検討されるようになった。また、これらの方式とは別の考え方に基づいて、緩和時間が比較的長い通常のバンド間遷移二つを差分的に用いることで実効的に超高速変調を実現する^{15,16)}方法なども研究されており、超高速光制御光変調デバイスの実現に向けて様々な方式が検討されつつある。

ところで、サブバンド間遷移には、上述の(a)緩和時間が短いという特長にくわえて、(b)量子井戸の幅および深さ等の変更により遷移波長を比較的容易に制御できる、(c) 遷移の双極子モーメントが大きいという特長があり、³⁾ 物理的に非常に興味深いだけでなく、他のデバイス応用の点からも近年大きな注目を集めている。例えば、赤外光領域での受像デバイス^{17,18)}が実現されており、最近では、量子カスケードレーザと呼ばれる従来とは異なる新しい方式のレーザ^{19,20)}が実現され、発光デバイスとしての応用も進みつつある。また、赤外領域での 2 次高調波発生等の光非線形デバイス^{21,22)}にも応用されつつある。しかしながら、サブバンド間遷移の波長は一般には $4\mu\text{m}$ 以上の長波長域に限られてきており、²³⁾ この点がデバイス応用上の大きな問題となる場合があった。特に本研究で検討する超高速光制御光変調では実用上サブバンド間遷移波長の短波長化が(後述のように)強く要求される。また、サブバンド間遷移の短波長化が進めば、上述のように優れた物性的特長を持つサブバンド間遷移の利用がもっと容易になり、その特性を活用した高性能な光デバイスの開発が促進されるであろう。

このような背景のもと、本研究では超高速の光制御光変調デバイスへの応用を目指しつつ、半導体量子井戸中のサブバンド間遷移について、その遷移波長の短波長化と緩和時間の測定を中心とする研究を行った。

B 本論文の構成

研究内容は大きく分けて 5 部構成となっている。以下に各内容について、本研究における特色と得られた成果を簡単に述べる。

サブバンド間遷移を用いた超高速光制御光変調の自由電子レーザーによる検証(第 2 章)

本章では、従来の長波長サブバンド間遷移を用いて光制御光変調の原理実証を行った結果について述べる。変調動作を確認するため、従来の $\text{GaAs}/\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 量子井戸を用いた変調デバイス(サブバンド間遷移波長 $\sim 10.6\mu\text{m}$)を作成し、制御光源として $10\mu\text{m}$ 付近で 3ps 程度の極短パルス光を発生可能な可変波長レーザーである自由電子レーザーを使用した実験を行う。この実験により、本方式において制御光幅(3ps)程度の超高速変調が可能であることを(間接的ではあるが)示す。

サブバンド間遷移短波長化のための材料選択・構造設計および成長条件の検討(第 3 章)

本章では提唱している光制御光変調の実用化に向けて、より一般的な制御光源の利用を可能にするためにサブバンド間遷移の短波長化方法を検討した結果について述べる。まず、半導体レーザーの利用可能な $2\mu\text{m}$ 以下の実現を目指して短波長化に必要な構造を詳しく検討し、GaAs 基板上の $\text{InGaAs}/\text{AlAs}$ という新たな独自の系がデバイス応用に必要な多重量子井戸の作製に有利との結論を得たことを述べる。さらに詳細な理論計算により $2\mu\text{m}$ 以下の短波長化に必要な具体的構造を設計する。また、設計した構造を実際に作製する方法および成長条件について基礎的な検討も行う。

GaAs 基板上 $\text{InGaAs}/\text{AlAs}$ 量子井戸によるサブバンド間遷移の短波長化(第 4 章)

本章では第 3 章の結果をもとに実際にサブバンド間吸収の短波長化を追求した結果について述べる。種々の井戸幅の n 型 $\text{InGaAs}/\text{AlAs}$ 多重量子井戸試料を作製し、赤外光吸収スペクトル測定を行うことでサブバンド間遷移の特性を調べる。そして、半導体モードロックレーザーを利用可能な領域である $1.90\mu\text{m}$ までのサブバンド間遷移の

短波長化が達成できたことを示す。サブバンド間吸収の偏光特性についても、実験および理論の両面から検討を行う。また、サブバンド間吸収スペクトル幅についても検討し、これが井戸幅の揺らぎに起因していることを明らかにする。

短波長化サブバンド間遷移の吸収強度の増大化(第 5 章)

本章では第 4 章で実現した短波長化サブバンド間遷移において、デバイス応用には十分な光吸収が必要であるとの観点から吸収強度についての検討を行った結果について述べる。まず、サブバンド間吸収の積分量の試料構造依存性を調べ、井戸幅の減少に伴って吸収強度が急速に減少することを示す。詳しい理論的検討により、その原因を明らかにし、これを抑制する方法について理論的検討をもとに種々の方法を立案して実験を行う。その結果、成長温度の低減、井戸層 In 組成の増加および障壁層幅の低減により電子の障壁層への漏出を抑制する手法が有効であることを発見し、吸収強度を最適化前の 12 倍にまで増加させることに成功したことを述べる。

短波長化サブバンド間遷移における電子励起の超高速緩和特性(第 6 章)

本章では、第 4 章で達成した短波長サブバンド間遷移の緩和特性について検討した結果について述べる。超高速光制御光変調を含む超高速デバイスへの応用可能性を探るため、これまで報告例のない短波長化サブバンド間遷移の緩和時間を実際に測定する試みを行う。サブバンド間吸収飽和の過渡特性を時間分解能 100fs で測定可能なポンプ&プローブ法測定系を構築し、サブバンド間遷移波長が 2.5 μm の試料に対して測定を行い、緩和時間 2.7~3.5 ps 程度という長波長サブバンド間遷移と同等の値を得たことを示す。さらに、光非線型効果の大きさを決める重要な特性であるサブバンド間遷移の電子分極の緩和時間についても独自の方法で実験的検討を行い、理論計算結果と対比させて検討を行うことで、障壁層電子のクーロン遮蔽効果が大きな影響を持つことを示し得たことについて述べる。

結論(第 7 章)

本研究で得られた成果をまとめて述べ、さらに今後の研究課題および展望について議論する。

参考文献

- ¹ 猿渡 正俊: 応用物理 67, 44 (1998).
- ² M. Tsukada and T. Matsunaga: Proceedings of Int. Conf. on Photonics in Switching 96, PMA-2, p.36.
- ³ L. C. West and E. G. Eglash: Appl. Phys. Lett. 46, 1156 (1985).
- ⁴ B. K. Ridley: Phys. Rev. B39, 5282 (1989).
- ⁵ S. Rudin, T. L. Reinecke: Phys. Rev. B41, 7713 (1990).
- ⁶ H. Rücker, E. Molinari, P. Lugli: Phys. Rev. B45, 6747 (1992).
- ⁷ S. Noda, T. Uemura, T. Yamashita, and A. Sasaki: J. Appl. Phys. 68, (6529) 1990.
- ⁸ S. Noda, T. Uemura, T. Yamashita, and A. Sasaki: IEEE J. Quantum Electron. 28, 493 (1992).
- ⁹ S. Noda, T. Yamashita, M. Ohya, and A. Sasaki, IEEE J. Quantum Electron. 29, 1640 (1993).
- ¹⁰ S. Noda, M. Ohya, Y. Muromoto, T. Asano, and A. Sasaki, IEEE J. Quantum Electron. 31, 1683 (1995).
- ¹¹ Y. Nishikawa, A. Takeuchi, S. Nakamura, S. Muto, and N. Yokoyama: Appl. Phys. Lett. 66, 839 (1995).
- ¹² A. Takeuchi, Y. Nishikawa, and O. Wada: Appl. Phys. Lett. 68, 797 (1996).
- ¹³ R. Takahashi, Y. Kawamura, T. Kagawa, and H. Iwamura: Appl. Phys. Lett. 65, 1790 (1994).
- ¹⁴ R. Takahashi, Y. Kawamura, and H. Iwamura: Appl. Phys. Lett. 68, 153 (1996).
- ¹⁵ S. Nakamura, K. Tajima, and Y. Sugimoto: Appl. Phys. Lett. 66, 2457 (1995).
- ¹⁶ K. Tajima, S. Nakamura, and Y. Sugimoto: Appl. Phys. Lett. 67, 3709 (1995).
- ¹⁷ W. A. Beck, J. W. Little, A. C. Goldberg, and T. S. Faska, edited by H. C. Liu, B. F. Levine, and J. Y. Anderson: *Quantum Well Intersubband Transition Physics and Devices*, (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht / Boston / London, 1994), p. 55.
- ¹⁸ L. B. Allard, H. C. Liu, M. Buchanan, and Z. R. Wasilewski: Appl. Phys. Lett. 70, 2784 (1997).
- ¹⁹ J. Faist, F. Cappaso, C. Sirtori, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, S. N. G. Chu and A. Y. Cho: Appl. Phys. Lett. 63, 1354 (1993).
- ²⁰ J. Faist, F. Cappaso, C. Sirtori, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho: Appl. Phys. Lett. 66, 538 (1995).

²¹ W. W. Bewley, C. L. Felix, J. J. Plombon, M. S. Sherwin, M. Sundaram, P. F. Hopkins, and A. C. Grossard: Phys. Rev. B 48, 2376 (1993).

²² Z. Xu, P. M. Fauchet, G. W. Wicks, M. J. Shaw, M. Jaros, B. Richman, and C. Rella, edited by H. C. Liu, B. F. Levine, and J. Y. Anderson: *Quantum Well Intersubband Transition Physics and Devices*, (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht / Boston / London, 1994), p. 457.

²³ B. F. Levine, A. Y. Cho, J. Walker, R. J. Malik, D. A. Kleinman, and D. L. Sivco: Appl. Phys. Lett. 58, 1092 (1991).

第2章 サブバンド間遷移を用いた光制御光変調の自由電子レーザーによる検証

A はじめに

本研究ではまず、従来の長波長サブバンド間遷移を用いて光制御光変調の原理実証を行った。本研究で検討した変調方式では n 型量子井戸における、サブバンド間に共鳴した光(制御光)とバンド間に共鳴した光(信号光)の結合を利用しており、サブバンド間励起の緩和時間がピコ秒程度であるため超高速の変調速度が期待できる。¹⁻⁴⁾ 本章ではまず、提案している変調原理について詳しく説明し、つぎに密度行列を用いて計算した理論的変調特性について述べる。そして、サブバンド間光源としてピコ秒程度の極短光パルス(pulse)を生成し得る自由電子レーザー(free electron laser)を用いた変調実証実験の結果について詳しく述べる。

B 変調原理

図 2.1に本変調の原理を模式的に示す。利用する量子井戸は、井戸幅および障壁高さを適切に設定することにより、伝導帯側に二つのサブバンドが存在するように設計された構造とする。さらに適度な量の n 型不純物を添加することで電子を井戸層に供給する。その際、伝導帯側の第 1 サブバンドの底付近が電子で占有され、かつ第 2 サブバンドには電子が存在しない状態となるように電子供給量を制御しておく。この状態では図 2.1.(a)に示すように、伝導帯第 1 サブバンドの底付近がほぼ占有されているため、価電子帯第 1 サブバンド頂上から伝導帯第 1 サブバンド底の遷移(以後、バンド間遷移とする)が強く抑制されている。この、バンド間遷移に一致する光子エネルギーを持つバンド間光を信号光として量子井戸を透過させた場合、バンド間遷移による光吸収が抑制されているので信号光の透過率は高くなっている。ここで、伝導帯第 1 サブバンドと第 2 サブバンドのエネルギー差に一致する光子エネルギーを持つサブバンド間光を制御光として照射する。このサブバンド間光は図 2.1.(b)に示すように、伝導帯第 1 サブバンドの電子を第 2 サブバンドに励起することにより吸収される。このため、第一サブバンドに空準位が生じてバンド間遷移の抑制が解除され、量子井戸の

バンド間光透過率が低下して信号光に変調がかかる。その後、制御光照射を停止すると図 2.2 に模式的に示すように、第 2 サブバンドに励起された電子は LO フォノンの放出によりピコ秒程度で第 1 サブバンドに戻り、⁵⁻⁷⁾ さらに各種のフォノン散乱および電子電子散乱等によりサブピコ秒で第 1 サブバンド内での熱平衡状態にまで緩和する。⁸⁾ その結果、ピコ秒程度の非常に短い時間で第 1 サブバンド底の電子密度が回復し、バンド間遷移が抑制された初期状態に戻り、信号光透過率の高い状態に復帰する。つまり、変調の立ち下り時間として ps 程度の超高速動作が期待できる。

本変調方式の実際の応用では、変調をかける際に生じる信号光の吸収による伝導帯第一サブバンドの電子密度の増加が、初期状態の第一サブバンドの電子密度と比較して十分小さくなるような信号光強度を用いる必要がある。なぜなら、実際の応用では定常的に変調をかけるのではなく伝送する情報に応じたパターンで変調をかけるため、変調をかける状態が多く続く場合とかけない状態が多く続く場合が生じ得る。この両方の場合で、変調特性に違いが生じないためには上述の条件が要求される。また、信号光が強い場合には上述の現象だけでなく、制御光と信号光のより複雑な非線形相互作用が生じることになると考えられる。

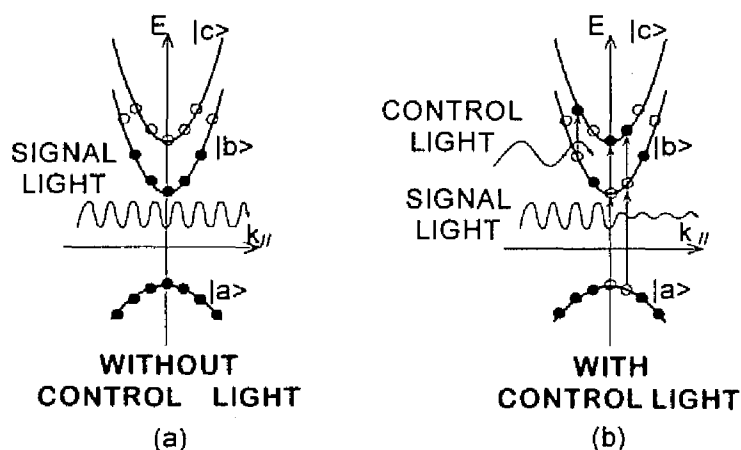


図 2.1: 超高速光制御光変調の原理の模式図

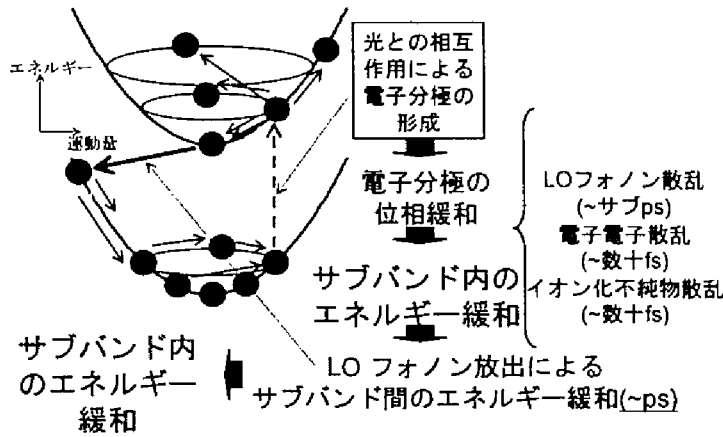


図 2.2: サブバンド間励起の緩和過程の模式図

C 理論的検討

本研究ではまず、理論計算による変調特性の検討を行った。計算は密度行列理論に基づいて行い、3次の非線形項の影響までを考慮した。²⁾ ρ を3準位を持つ電子系の状態を表す3行3列の密度行列とする。その1行目および1列目が価電子帯第1サブバンド、2行目および2列目が伝導帯第1サブバンド、3行目および3列目が価電子帯第2サブバンドに対応するとして、それぞれ添え字 a, b, c で表す。この電子系が角周波数 ω_s および ω_I の光と相互作用している状況を仮定すると、密度行列の時間発展は次式で表すことができる。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [(H_0 + H_I), \rho] - \frac{1}{2} [\Gamma(\rho - \rho_0) + \Gamma(\rho - \rho_0)] \quad (2-1)$$

ここで \hbar はプランク定数を 2π で割った定数であり、 $[\ , \]$ は量子力学的交換演算を意味する記号である。また H_0 は摂動が無い場合のハミルトニアンであり、対角項に各準位のエネルギーをもつ対角行列である。 H_I はサブバンド間光およびバンド間光と電子系の相互作用ハミルトニアンであり、次式で表される。

$$H_I = -M[F_s(t) + F_c(t)] \quad (2-2)$$

ここで、 M は双極子モーメント演算子であり、非対角項のみをもつ行列である。

$$M = \begin{bmatrix} 0 & M_{cb} & 0 \\ M_{bc} & 0 & M_{ba} \\ 0 & M_{ab} & 0 \end{bmatrix} \quad (2-3)$$

$M_{cb} = M_{bc}$ はサブバンド間遷移の双極子モーメントであり、 $M_{ba} = M_{ab}$ はバンド間遷移の双極子モーメントである。式(2-2)中の F_b および F_c はそれぞれ信号光(バンド間光)および制御光(サブバンド間光)の電界強度であり、それぞれ角周波数 ω_s および ω_I で正弦振動している。また、 Γ は電子系の緩和を表す現象論的な行列であり、対角項に各サブバンドのエネルギー緩和時間の逆数を持ち、非対角項には電子分極の位相緩和時間の逆数を持つ。これらの式を用いて、式(2-1)を摂動法およびフーリエ級数展開法を用いて3次の非線形効果の項まで解析的に求め、その密度行列の ω_s で振動する成分を計算し、信号光の光吸収係数および屈折率の制御光強度に対する依存性を求めた。計算の詳細な部分は参考文献2に従って行った。

計算対象のモデルとしては図 2.3に示す幅 79\AA の $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ / GaAs 量子井戸を仮定し、サブバンド間遷移波長 $10.6\mu\text{m}$ 、バンド端でのバンド間遷移波長 840nm および電子密度 $2 \times 10^{18}\text{cm}^{-3}$ の構造を想定した。また、電子分極の位相緩和時間としては 0.2ps を、サブバンド間のエネルギー緩和時間としては(ホールバーニング効果を考慮して)同じく 0.2ps を仮定した。以上のパラメータを用いて 300K において、サブバンド間光の照射が無い場合、および強度 $1\text{MW}/\text{cm}^2$ のサブバンド間光を照射した場合のそれぞれについて、量子井戸のバンド間吸収および屈折率を計算した結果を図 2.4に示す。同図から、サブバンド間光の照射によってバンド間光の吸収が確かに増加することが分かる。この吸収の変化はバンド端付近で最大となっており、 $1\text{MW}/\text{cm}^2$ のサブバンド間光で最大 3000cm^{-1} 程度と大きく変化している。この結果は、提唱している光非線形現象の光変調デバイスへの利用が十分可能であることを示している。また、制御光照射による屈折率の変化も大きいことから、位相変調への応用も期待できることが分かる。

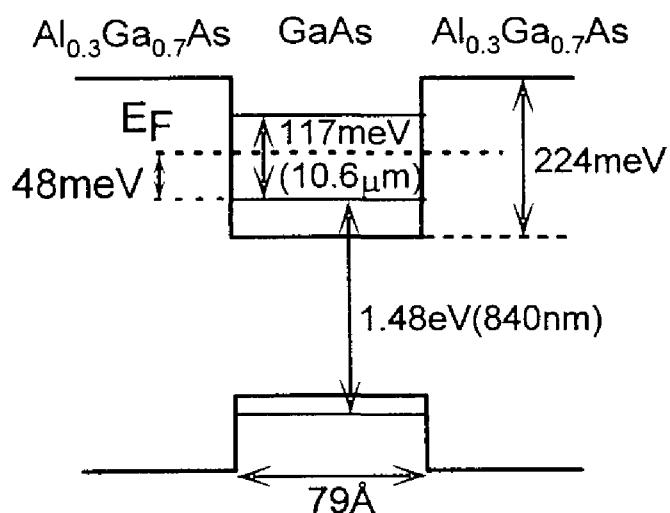


図 2.3: 計算で想定した量子井戸の構造

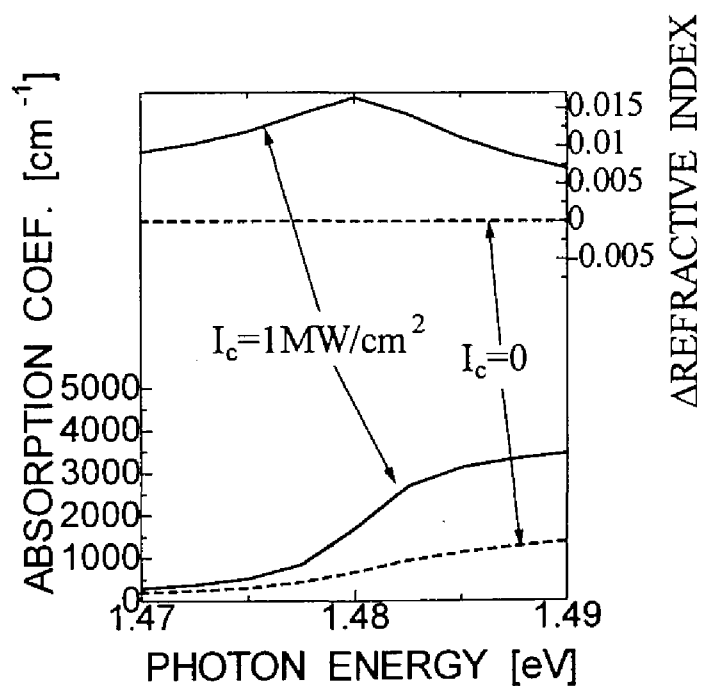


図 2.4: サブバンド間光の照射によるバンド間光に対する光吸収係数の変化

D 変調動作の検証

D-1 試料

上記の原理による光制御光変調が可能であることを実証するため、まず従来の技術で作製可能な中赤外域にサブバンド間遷移波長をもつ GaAs/AlGaAs 量子井戸構造を用い、自由電子レーザを使って変調動作の検証実験を行った。⁹⁾ 実験に用いた構造は計算で仮定したものとほぼ同等であり、試料は MBE 法を用いて作製され、活性層部分は井戸層幅 76Å、障壁層幅 141Å の GaAs / Al_{0.3}Ga_{0.7}As 量子井戸 30 個から構成されている。また、n 型不純物として Si を障壁層のみに選択的に $3 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ の密度で添加して第 1 サブバンドに電子を供給している。この構造はクーロン遮蔽(Coulomb screening)効果を考慮した準位計算により、サブバンド間遷移波長が 10.6μm 程度、バンド間遷移波長が 840nm 程度、そしてフェルミ(Fermi)準位が第一サブバンドの底から 30meV 程度になるように設計されている。後述の図 2.8 (b)に示す量子井戸試料に対するフーリエ干渉分光計(Fourie transform infrared spectroscopy, FTIR)による赤外光スペクトルの測定から分かるように、作製された構造はほぼ設計通のサブバンド間吸収ピーク波長を示している。

実験ではこの試料をさらに図 2.5に示す導波路型のデバイスに加工して用いた。その手順を以下に簡単に述べる。

- (a) フォトリソグラフィ(photo lithography)技術を用いて上側の光閉込め層を幅 5μm のストライプ状に残しつつ、残りの部分を硫酸系エッチャント(etchant)を用いて厚さ 0.1~0.3μm 程度を残して取り除くことで光導波路を形成した。
- (b) 基板裏面を試料全体の厚さが 100μm 以下になるまで削った後に鏡面研磨した。
- (c) 光導波路長が 100μm 程度となるように試料を 100μm×1mm 程度の大きさに劈開した後、取り扱いを容易にするためのマウント(mount)に貼り付けた。

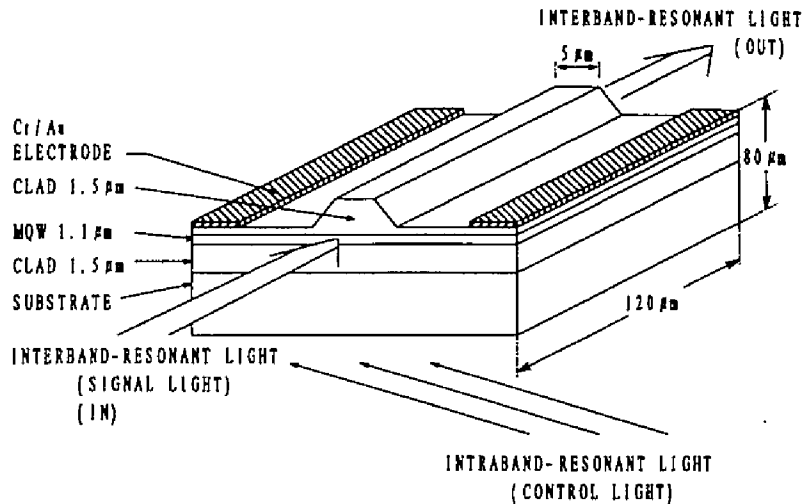


図 2.5: 実験に用いた試料のデバイス構造

D-2 測定系

変調実験は図 2.6に示す系を用いて行った。この系は、基本的には信号光源として半導体レーザを、制御光源としては以下に述べる自由電子レーザを用い、制御光照射時の信号光の変化を Si-pin フォトダイオード(photo diode)で捕らえ、デジタル・オシロスコープ(degitzing oscilloscope)で記録する構成になっている。以下に測定系の構成と特徴を詳しく述べる。

まず最も重要な構成部分である制御光源としては、自由電子レーザ研究所(株)に設置されている電子リニアック(electron linac)駆動の自由電子レーザー装置 1 号を用いた。この装置は $22\sim 5\mu\text{m}$ の赤外領域で発振し得る可変波長レーザである。その出力は繰り返し 10Hz、幅 $15\mu\text{s}$ のマクロ(macro)光パルスから構成されており、その平均パワーは $20\sim 50\text{mW}$ 程度である。各マクロパルスはさらに 45ns 間隔で到来する 300~400 個のマイクロ(micro)光パルスから構成されている。個々のマイクロ光パルスは幅 3.5ps 程度の極短光パルスであるため、本方式によるピコ秒程度の超高速光制御光変調を実証するための十分な特性を備えているといえる。また、パルス幅が小さいため出力光のピークパワーは MW 程度と大きいにもかかわらず、平均パワーは比較的低いので制御

光の吸収によって発生する熱の影響は生じないものと考えられる。

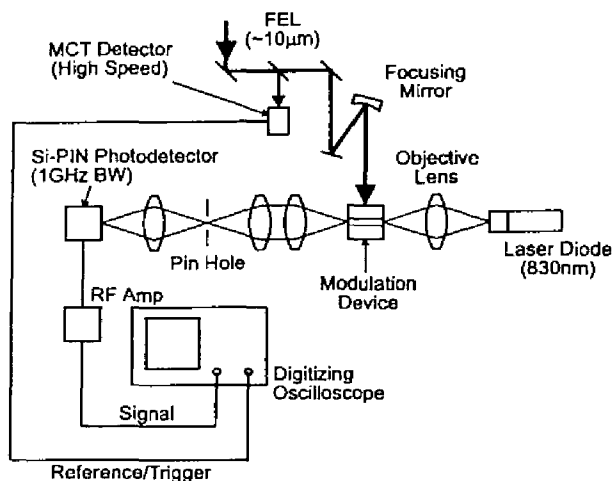


図 2.6: 変調実験系

制御光は図 2.5に示したように、鏡面研磨したデバイスの裏面から TM 偏光のブリュスター角(Brewster angle) $\theta_B (= \sim 73^\circ)$ で入射している。これにより、反射による制御光の損失を防ぎ、かつサブバンド間遷移の選択側を満たす成長方向の電界成分を大きくしている。この場合、サブバンド間遷移に結合する実効的な制御光強度 I_{eff} は入射制御光強度を I_{inc} とすると、

$$I_{eff} = I_{inc} \cot \theta_B \cos^2(\theta_B) = I_{inc} / n(1 + n^2) \quad (2-4)$$

によって表すことができる。ここで n は試料の平均屈折率であり、3.27 程度の値である。マイクロパルス幅を 3.5ps とすると、デバイスへの入射制御光強度を I_{inc} は 17 MW/cm² と評価でき、上式を用いると実効的制御光強度は 500 kW/cm² と計算される。これは、前述の理論計算結果から考えて十分な変調が期待できる強度といえる。

制御光の一部をビーム・スプリッター(beam splitter)によって分離されて HgCdZnTe 高速赤外線検出器に結合される。この検出器の立ち上がり時間は 1ns 程度、立下り時間は 2~3ns であり、各マイクロパルスの波形を観測することは不可能であるが、パルスの到来タイミングを検出することは可能である。この到来タイミングに同期させてデ

デジタル・オシロスコープを動作させることで、信号光の制御光による変化を精度よく記録した。

信号光源としては波長 830nm の AlGaAs 系半導体定常光レーザを用い、その光を対物レンズ(lens)を用いて変調デバイスの導波路端面に結合させ、導波路に導入した。導波路中を伝播して反対側の導波路端面から出射された信号光を対物レンズと接眼レンズによって結像させ、その像の位置に直径 1mm 程度のピンホールを設置して導波路を通った信号光のみを取り出し、回折光等の背景光を取り除いた。さらに集光レンズを用いて、この信号光を Si-pin 高速フォトダイオードに結合させた。フォトダイオードの出力電圧は最大で 9mV 程度であり、これから約 60 μ W の信号光が導波路と結合していることが判明した。このパワーから光導波路の幅 5 μ m および量子井戸層の総厚 0.7 μ m を用いて計算すると、導波路内での信号光強度は 2kW/cm² 以下と評価できる。この低い強度はBで述べた信号光によって電子分布が大きく変化しないという条件を満たしていると言える。また、長さ 100 μ m 導波路を信号光が伝播するのに要する時間は 3~4ps であり、これは制御光パルスの幅と同程度である。よって、デバイスの大きさのために制御光パルス幅よりも大きい幅の変調が生じるといった問題はなく、制御光と同程度の幅の変調が観測可能な構成である。しかしながら、信号光検出に用いたフォトダイオードの立ち上がりおよび立ち下がり時間はそれぞれ 400ps と遅く、このため測定系全体の時間分解能は 800ps 程度に制限されている。信号光変化の状態は、Si-pin フォトダイオードの出力を高周波アンプで 25dB 増幅し、前述の方法で制御光パルスに同期させたデジタル・オシロスコープで取り込むことで測定した。オシロスコープでの取り込みは 500 回以上行い、これを平均化することで種々の乱数的雑音を抑制した。

D-3 測定結果および考察

まず自由電子レーザ光波長を 10.5 μ m に設定し、試料のサブバンド間遷移波長に共鳴させて実験を行った。この波長ではサブバンド間吸収が最大となるため、変調の原理から考えて最も信号光の変化が大きく、観測が行いやすいと考えられる。図 2.7 に制御光をデバイスに照射した時の透過信号光強度の時間変化を、制御光強度の時間

変化と合わせて示す。同図から制御光パルスの照射タイミングに対応して信号光強度が鋭く減少していることが分かる。これは提唱している原理に基づくサブバンド間の電子励起に起因するバンド間光吸収の増加による変調が観測されたものと考えられる。また同図から分かるように、制御光パルス列の強度が比較的安定しているのに対して、信号光の変調の深さ、すなわち変調度は 0.1% 程度揺らいでいるが、これは平均化した後も残留している雑音成分の影響と考えられる。(ここで変調度 m は $m = (I_1 - I_2)/I_1$ 、ただし I_1 は制御光非照射時の信号光強度、 I_2 は制御光照射時の信号光強度で定義される量とする。) 実際、同図から制御光非照射時の信号光強度自体に 0.1% 程度の雑音が残留していることが見て取れる。

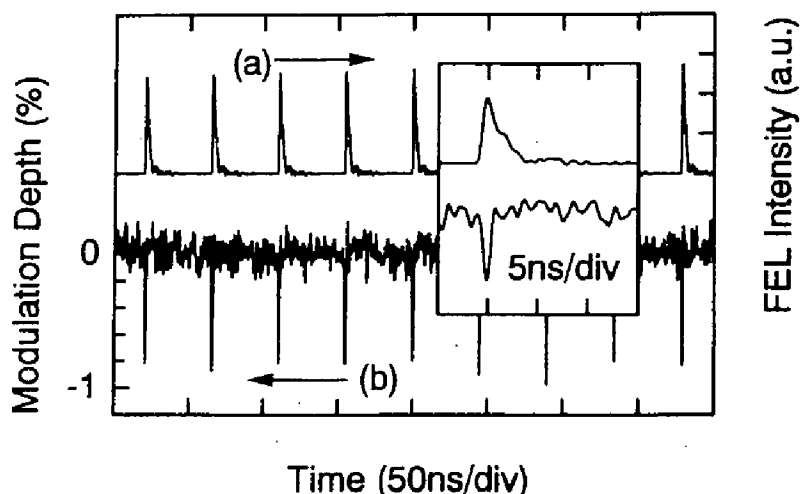


図 2.7: 光制御光変調実験結果の典型的な例。(a)制御光である自由電子レーザー光パルス列の強度変化波形、(b)対応する信号光の強度変化波形、挿入図は拡大波形

つぎに、変調度の制御光波長依存性を測定した。図 2.8 (a)に制御光波長を $8.5\mu\text{m}$ から $11.5\mu\text{m}$ まで $0.5\mu\text{m}$ 間隔で変えたときの変調度の変化を示す。変調度は制御光波長が $10.5\mu\text{m}$ のときの値を 1 として正規化してある。実験は波長を変えても制御光強度が一定(実効的強度約 $300\text{kW}/\text{cm}^2$)になるように調整して行った。この結果と比較できるように図 2.8 (b)にフーリエ変換赤外分光測定装置を用いて測定した試料のサブバンド間吸収スペクトルを示す。同図(a)と(b)を比較すると両者はよく一致しているこ

とが分かる。このことから観測された変調がサブバンド間遷移に起因する変調であり、提唱している原理によるものであることが明確に示されたといえる。

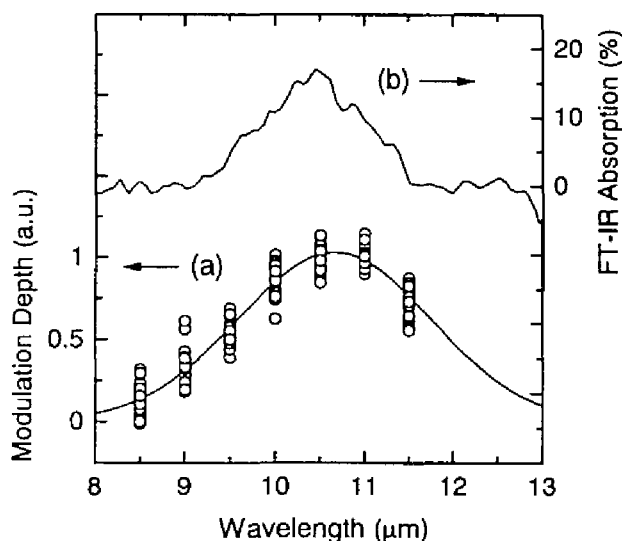


図 2.8: (a)変調度のサブバンド間光波長依存性、(b)試料のサブバンド間吸収スペクトル

さらに、図 2.7内に挿入した波形の拡大図から、信号光の変調度波形はピーク値で 0.9%程度であり、変調の立ち上がりとしち下がりそれぞれ約 400ps であることが分かる。ここで観測された変調の応答時間は 400ps 程度と通常のパンド間遷移のエネルギー緩和時間(~数 ns)よりもかなり小さく、このことからB節で述べたキャリア蓄積等の遅いパンド間緩和の影響はないことが分かる。しかしながら、図 2.7の観測結果は図 2.4の理論計算から予想される値(100%の変調)と比較して強度的にかなり小さくかつ時間的に遅い変化となっている。この不一致は測定系の時間分解能が実際に生じている信号光の変化に追従できないことに起因している可能性が高い。つまり、時間分解能が 800ps 程度の測定系により制御光パルス幅程度、つまり幅 10ps 以下の変調度 100%の信号光変化を観測したため、信号光変化が時間軸方向に 100 倍程度引き伸ばされた結果、同図に示したような波形が得られたと考えられる。

この仮説を裏付けるため、変調度の制御光強度依存性を測定した。測定は図 2.7と同じ条件を用い、照射されている制御光マクロパルスの中で信号光を観測する時間

窓の位置を変えることにより行った。制御光マイクロパルスはマクロパルスの先頭付近では弱く中心付近で強くなっているため、観測時間窓をずらすことで実質的に制御光強度を変えることができる。この方法では光強度減衰フィルター挿入等の光学経路の変更が全くないため、精度良く制御光強度依存性を測定できた。図 2.9 にその結果を示す。同図から制御光強度が小さい間は、制御光強度の増加に比例して信号光の変調度が増加するが、制御光強度が大きくなると変調度の増加は飽和して一定値に収束することが分かる。この結果は、制御光と同程度の幅でのみ変調が生じているため、その狭い幅での変調度が 100% に達するまでは観測変調度は増加するが、100% に達した後はそれ以上に大きな変調は生じ得ないため観測変調度が飽和すると考えるのが最も妥当といえる。もしも、より広い幅で変調が生じている場合はこのような飽和現象は生じ得ない。また変調度が飽和している付近での制御光の実効的ピーク強度は前述のように約 500 kW/cm^2 と見積もられるので、このピーク強度で 100% の変調が生じるという結果になる。これに対して、前述の理論計算では 1 MW/cm^2 の制御光強度で 3000 cm^{-1} の吸収係数の変化が期待できるという結果が得られており、これにデバイスの光導波路長 $100\mu\text{m}$ および光閉込め係数 20% を考慮すると、 500 kW/cm^2 の制御光強度で 95% の変調が生じる得ることが分かる。これは実験結果とよく一致しており、上記の仮説が裏付けられたといえる。

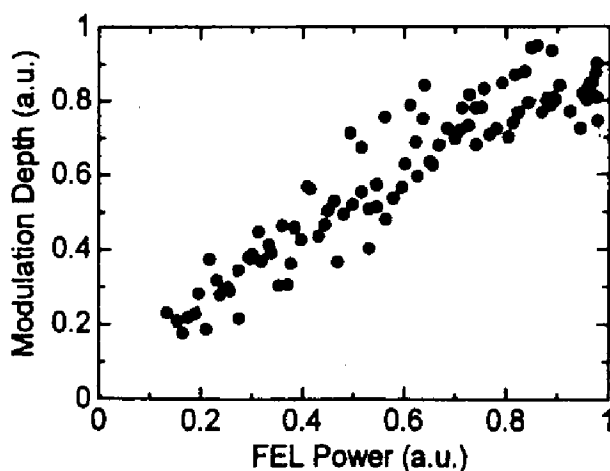


図 2.9: 変調度の制御光強度依存性。

以上の検討の結果、提案しているサブバンド間遷移を用いた光制御光変調方式により 10ps 以下程度の超高速変調が達成できていることを、間接的ではあるが示し得た。しかしながら、測定系の時間分解能の限界から直接的にピコ秒レベルでの変調を観測することはできなかった。

E まとめ

本研究ではまず、サブバンド間遷移を用いた光制御光変調の原理実証を行った。本研究で検討した変調方式は、n 型量子井戸においてサブバンド間に共鳴した光(制御光)の照射による伝導帯第一サブバンドの電子の第二サブバンドへの励起に伴って、価電子帯第一と伝導帯第一サブバンド間のバンド間に共鳴した光(信号光)に対する吸収係数および屈折率が変化するという光非線形効果を利用する方式であり、ピコ秒程度の非常に高速な変調が可能と考えられる。変調動作を確認する実験を行うため、まずサブバンド間遷移波長(制御光波長)が $10.6\mu\text{m}$ でバンド間遷移波長が 840nm 程度の GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As 量子井戸を用いた導波路構造型の変調デバイスを作製した。つぎに、サブバンド間遷移波長である $10\mu\text{m}$ 付近で 3ps 程度の極短パルス光を発生可能な可変波長レーザである自由電子レーザを制御光源に、 830nm の半導体レーザを信号光源に用いて、制御光照射に伴う信号光の強度変化を高速 PIN フォトダイオードで測定した。その結果、制御光の照射に伴う信号光の透過率の変化が確認され、またその透過率の変化は制御光の波長をサブバンド間吸収のある波長に設定したときのみに変調が生じることから、確かにサブバンド間遷移の結合によって変調が生じることを明らかにできた。ここでは、測定系の分解能の限界から直接的にピコ秒レベルでの変調を観測することはできなかった。しかし、自由電子レーザ光強度を増加させた際に信号光の変化率が飽和することから、実際には制御光の幅である 3ps 程度の変調が生じていることを(間接的にではあるが)はじめて示すことができた。これについては、以下の章でサブバンド間遷移を短波長化することにより、測定系の問題を打開するとともに変調デバイスをより実用に近づけるための検討を行った結果について述べる。

参考文献

- ¹ S. Noda, T. Uemura, T. Yamashita, and A. Sasaki: J. Appl. Phys. **68**, (6529) 1990.
- ² S. Noda, T. Uemura, T. Yamashita, and A. Sasaki: IEEE J. Quantum Electron. **28**, 493 (1992).
- ³ S. Noda, T. Yamashita, M. Ohya, and A. Sasaki, IEEE J. Quantum Electron. **29**, 1640 (1993).
- ⁴ S. Noda, M. Ohya, Y. Muromoto, T. Asano, and A. Sasaki, IEEE J. Quantum Electron. **31**, 1683 (1995).
- ⁵ B. K. Ridley: Phys. Rev. **B39**, 5282 (1989).
- ⁶ S. Rudin, T. L. Reinecke: Phys. Rev. **B41**, 7713 (1990).
- ⁷ H. Rücker, E. Molinari, P. Lugli: Phys. Rev. **B45**, 6747 (1992).
- ⁸ K. Turner, L. Rota, R. A. Taylor, J. F. Ryan, C. T. Foxton: Appl. Phys. Lett. **66**, 3188 (1995).
- ⁹ T. Suzuki, T. Mituyu, K. Nishi, H. Ohyama, T. Tomimasu, S. Noda, T. Asano, and A. Sasaki: Appl. Phys. Lett. **69**, 4136 (1996).

第3章 サブバンド間遷移短波長化のための材料選択・構造設計および成長条件の検討

A はじめに

第2章で述べた自由電子レーザによる実験により、サブバンド間遷移を用いた光制御光変調が可能であることは実証されたが、その超高速性は測定系の問題から間接的に証明されたに留まっていた。¹⁾ ピコ秒程度と予想されるこの変調方式の応答時間を直接的に調べるには 100fs レベルの極短パルス光源を用いて、いわゆるポンプ&プローブ法(pump & probe method)²⁾による測定を行う必要があるが、これは自由電子レーザを用いた測定系では原理的に実現不可能である。また実際問題として自由電子レーザのような大掛かりな装置を用いて光通信システムを構築することは非現実的であり、実用的にはより小型・高性能な制御光源を利用する必要がある。これらの問題は用いた量子井戸のサブバンド間遷移波長が 10.6 μm と長いため、一般的な光源が利用できないこと起因している。そこで本研究では、以上の問題を解決するためにサブバンド間遷移波長の短波長化を検討した。

近赤外域で一般に利用できる高性能極短パルス光源としてはモードロック(mode lock)・チタン・サファイアレーザ光の光パラメトリック(parametric)発振・増幅を利用する装置(1.5~3 μm)や InGaAsP 系半導体レーザ(1.55 ~ 2 μm)³⁻⁵⁾にモードロック機構を付加したものなどが想定できる。よって、まずは 3 μm 以下、可能ならば半導体レーザの利用可能な 2 μm 以下程度の短波長化が実現できれば前述の問題は解決できる。また、最終的には光通信で重要な波長である 1.55 μm を実現することも必要であろうと考えられる。これに対して現在一般的に用いられている GaAs / AlGaAs 量子井戸においては、利用可能なサブバンド間遷移波長は原理的に 4 μm 以上の長波長域であり、⁶⁾ これ以上の短波長化には新しい材料系の導入が必要である。遷移波長が 4 μm 以上に限定されている点は一般的なデバイス応用上も大きな問題となる場合があり、短波長化が進めば優れた物性的特長を持つサブバンド間遷移の利用がより容易になり、新しい高性能な光デバイスの開発が促進されと考えられる。よって、一般的な観点からしてもサブバンド間遷移の短波長化は非常に意義深い研究といえる。

サブバンド間遷移短波長化の研究としては本研究の他に幾つかの試みが報告されており、(a)InP 基板上の井戸層幅 40\AA ($\sim 13\text{ML}$) の $\text{In}_{0.66}\text{Ga}_{0.34}\text{As} / \text{In}_{0.3}\text{Al}_{0.7}\text{As}$ 歪多重量子井戸において波長 $3.1\mu\text{m}$ ⁷⁾ が、(b)GaAs 基板上の InGaAs グレーデッドバッファ層(graded buffer)上に形成した井戸層幅 30\AA ($\sim 10\text{ML}$) の InGaAs / AlGaAs 歪多重量子井戸において波長 $2.1\mu\text{m}$ ^{8,9)} が達成されている。また(c)InP 基板上の井戸層幅 $9\sim 18\text{\AA}$ ($3\sim 6\text{ML}$) の $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As} / \text{AlAs}$ 歪単一量子井戸を利用する試み¹⁰⁻¹³⁾ も報告されている。しかしながら、光制御光変調デバイスへの応用を考えると、(a),(b)では半導体レーザを光源として利用するにはサブバンド間遷移波長が長過ぎるという問題点があり、また(c)では歪みの問題から後述のように多重量子井戸の作製が困難であり、光と量子井戸の高い結合効率が必要なデバイスへの応用が難しいという問題点がある。本章ではこれらの問題点を考慮しつつ、一般的なデバイス応用に適した多重量子井戸の作製が可能な構造でサブバンド間遷移波長を短波長化する方法を検討した。

B 材料選択

B-1 短波長化の方法

障壁高さが無限大であり、電子のエネルギー-波数分散曲線が完全に放物線状であるような理想的量子井戸(井戸幅 W)を仮定すると、第 2 サブバンドの量子化エネルギーは $4/W^2$ に、第 1 サブバンドのそれは $1/W^2$ 比例する。¹⁴⁾ よって井戸層を狭くすると、第 1-第 2 サブバンド間のエネルギーは $3/W^2$ に比例して増大し、サブバンド間遷移を短波長化できる。また別の方法として、より幅の広い井戸における第 1-第 4 サブバンド間遷移等の高次のサブバンドへの遷移を用いることで、短波長化を行う方法も考えられる。しかし、同じ遷移波長を狙う場合、高次のサブバンドへの遷移ほど双極子モーメントが小さくなるという問題点がある。^{13,14)} 例えば上述の理想的量子井戸で考えても、第 1-第 4 サブバンド間の遷移の双極子モーメントは第 1-第 2 サブバンド間のその 5.5 分の 1 であり、遷移確率は双極子モーメントの二乗に比例するので 30 分の 1 以下となる。よって、この方法によるサブバンド間遷移の短波長化はデバイス応用に不向きであるため、最初に述べた井戸幅の狭い井戸における第 1-第 2 サブバン

ド間の遷移を用いる方法を検討することにした。

この方法で短波長化を行う場合、実際には量子井戸の障壁高さが有限であることを考慮しなければならない。井戸幅がある程度以上狭くなると第2サブバンドの量子化エネルギーが障壁の高さよりも大きくなり、連続状態と呼ばれる井戸層への波動関数の閉じ込めが弱い状態となる。¹⁵⁾ この場合、サブバンド間遷移の双極子モーメントが極端に小さくなり、サブバンド間の遷移確率が減少してデバイス応用に不向きになる。そこで、井戸幅を狭くすると同時に第2サブバンドを十分閉じ込めることができるように障壁を高く(井戸を深く)して、双極子モーメントを保ちつつ井戸幅を狭くして遷移波長を短くする必要がある。つまり、量子井戸を構成する材料系として、伝導帯バンドオフセットの大きい系が要求され、(a)障壁層として禁制帯幅の大きい材料、(b)井戸層として禁制帯幅の小さい材料、の適切な組み合わせを選択する必要がある。

B-2 材料系の検討

短波長化の最終目標として $1.55\mu\text{m}$ (0.8eV) を狙うには、上述の条件から無限大障壁の場合を考えても 1.1eV 以上の井戸深さが必要であり、実際には後述するバンドの非放物線性等の影響があるため、これよりも大きな値が要求される。このように大きな伝導帯バンドオフセットは従来の GaAs / AlGaAs 系材料 (GaAs / AlAs でも 1eV 程度) では達成不可能である。本研究では従来の材料系の延長線上でより大きい伝導帯バンドオフセットを達成することを考え、井戸層に GaAs よりも禁制帯幅の小さい InGaAs を用い、障壁層に禁制帯幅が最も大きい AlAs を用いる方法を試みた。本研究では検討しなかったが、将来的には GaN / AlN (伝導帯バンドオフセット 2eV 以上) 等のより大きいバンドオフセットの期待できる全く新しい材料系を用いる方法も有効と考えられる。¹⁶⁻¹⁸⁾

本研究で検討した井戸層(InGaAs) / 障壁層(AlAs)からなる材料系では、井戸層の格子定数が障壁層の格子定数よりも約 $7.2 \times x\%$ (x は井戸層の In 組成) だけ大きいため歪量子井戸となる。このことは、デバイス応用上重要な多重量子井戸の作製を行うには十分な配慮が必要なことを意味する。特に、重要であるのは基板の選択の問題である。InGaAs / AlAs という材料系に適した格子定数を持つ一般的に入手可能な基板と

しては、AlAs にほぼ格子整合した GaAs 基板¹⁹⁾と $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ に格子整合した InP 基板²⁰⁾の二種類が考えられる。後者を用いた場合については、InP 基板上の $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ (禁制帯幅 0.74eV) / AlAs (禁制帯幅 3.05eV) 単一量子井戸を用いた検討が既に報告されている。^{12,13)} しかしながら、この構造は AlAs 障壁層の格子定数が InP 基板に比べて 3.5% も小さく、障壁層に大きな引っ張り歪み加わることになる。引っ張り歪みは一般に圧縮歪みに比べて転位が導入されやすいことが知られており、²¹⁾ 高品質の多重量子井戸構造を作製することが困難な可能性が高い。これに対して GaAs 基板を用いた場合には、井戸層の InGaAs に圧縮歪加わるが、In 組成として 0 から 0.47 の間を用いるのであれば、その大きさは InP 基板を用いた場合に障壁層の AlAs に加わる 3.5% の歪よりも小さい。また歪みの加わる井戸層としては、2 μm 程度以下の短波長化を考える場合、後述のように 9 ML ($\sim 26\text{\AA}$) 程度以下の厚さが要求される。これに対して障壁幅としては、井戸層に電子を十分に閉じ込めるために、後述のように 30 ML ($\sim 87\text{\AA}$) 程度と 3 倍以上の厚さが必要である。このことを考慮すると表 3.1 に示すように幅の広い AlAs 障壁層に 3.5% もの引っ張り歪加わる InP 基板上の構造よりも、幅の狭い InGaAs 井戸層のみに 3.5% 以下の圧縮歪加わる GaAs 基板上の構造の方が量子井戸の層数を増やすには有利といえる。以上の検討により、デバイスへの応用には多重量子井戸化が不可欠であるとの観点から GaAs 基板を選択し、GaAs 基板上の $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{AlAs}$ 量子井戸 ($x < \sim 0.5$) を用いてサブバンド間遷移の短波長化を試みることとした。

表 3.1: 多重量子井戸を作製する基板としての GaAs と InP の比較

基板	GaAs	InP
井戸層: $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ (幅 $< \sim 26\text{\AA}$)	圧縮歪 0~3.5% ($x: 0\sim 0.5$)	歪なし
障壁層: AlAs (幅 $> \sim 87\text{\AA}$)	歪なし	引っ張り歪 3.5%
多重量子井戸化	有利	不利

C 構造設計

GaAs 基板上 InGaAs/AlAs 量子井戸に形成されるサブバンドの量子化エネルギーおよび波動関数を転送行列法によって計算し、遷移波長を $2\mu\text{m}$ 程度以下まで短波長化するために必要な具体的な構造パラメータを検討した。計算では、この構造に特有の以下の特性を考慮した。

- (a) 想定する井戸幅が非常に狭いので、電子のエネルギー-波数分散曲線の非放物線性(バンド非放物線性)^{22,23)}の影響が大きいと考えられること。
- (b) InGaAs 井戸層に最大 3.5%程度までの大きな圧縮歪み加わるのでバンド構造が大きく変化すること。^{21,24)}
- (c) 成長時の In の偏析により、設計構造と作製構造の間に In 組成の分布の大きな違いが生じる可能性があること。²⁵⁻³⁰⁾

以下、これらの影響を詳しく述べた後、実際の計算手順について簡単に説明する。

C-1 バンド非放物線性と歪

歪ハミルトニアンを対角化することで電子のエネルギー(E 井戸の底を 0 とする)に依存した有効質量 $m^*(E)$ を求め、これを用いることで(a)および(b)の影響を計算に取り入れた。k-P 摂動理論によると二軸性歪がある場合の伝導帯 Γ 谷における成長方向の運動量に対する有効質量 $m_{\perp}^*(E)$ は次式で表すことができる。^{24,31)}

$$\frac{1}{m_{\perp}^*(E)} = \frac{2P^2}{3m_0^2} \left[\frac{(\sqrt{2}\alpha - \beta)^2}{Eg_{lh} + E} + \frac{(\sqrt{2}\beta - \alpha)^2}{Eg_{so} + E} \right] \quad (3-1)$$

ここで、 P はバンド間遷移の運動量マトリクスエレメント(momentum matrix element)であり、 Eg_{lh} および Eg_{so} はそれぞれ伝導帯と軽い正孔(light hole, LH)帯およびスピン軌道分離 (spin-orbit split, SO)帯間の禁制帯幅である。ただし次式により、格子不整合に起因する歪の影響による禁制帯幅の変化を変形ポテンシャル(deformation potential)を用いて取り入れた。²⁴⁾

$$Eg_{lh} = Eg^0 + P_c^c - P_c + \frac{1}{2} \left\{ Q_c - \Delta + \sqrt{\Delta^2 + 2\Delta Q_c + 9Q_c^2} \right\}, \quad (3-2)$$

$$E_{g_{so}} = E_g^0 + P_c^c - P_c + \frac{1}{2} \left\{ Q_c - \Delta - \sqrt{\Delta^2 + 2\Delta Q_c + 9Q_c^2} \right\}, \quad (3-3)$$

ここで E_g^0 は歪の無い場合の禁制帯幅(バルク材料)であり、 Δ はスピン軌道分離エネルギーである。また、式中の P_c 、 P_c^c および Q_c は以下の式で表される。²⁴⁾

$$P_c = 2a_s[(C_{11} - C_{12})/C_{11}]\varepsilon_{||}, \quad (3-4)$$

$$P_c^c = 2a_c[(C_{11} - C_{12})/C_{11}]\varepsilon_{||}, \quad (3-5)$$

$$Q_c = -b_s[(C_{11} + 2C_{12})/C_{11}]\varepsilon_{||}. \quad (3-6)$$

ここで a_s 、 a_c それぞれ価電子帯および伝導帯の静水圧に対応する変形ポテンシャル、 b_s は価電子帯の剪断応力に対応する変形ポテンシャル、 C_{11} および C_{12} は弾性定数エレメントであり、 $\varepsilon_{||}$ は成長面内方向の歪である。また、 α および β は歪による LH 帯と SO 帯の混合度を表す無次元パラメータ(~ 1 のオーダー)であり、次式で表される。²⁴⁾

$$\alpha = \frac{2|Q_c|}{\sqrt{\sqrt{\Delta^2 + 2Q_c\Delta + 9Q_c^2} \left(\sqrt{\Delta^2 + 2Q_c\Delta + 9Q_c^2} - \Delta - Q_c \right)}} \quad (3-7)$$

$$\beta = \frac{\left(\sqrt{\Delta^2 + 2Q_c\Delta + 9Q_c^2} - \Delta - Q_c \right) |Q_c|}{\sqrt{2\sqrt{\Delta^2 + 2Q_c\Delta + 9Q_c^2} \left(\sqrt{\Delta^2 + 2Q_c\Delta + 9Q_c^2} - \Delta - Q_c \right)} \cdot Q_c} \quad (3-8)$$

運動量マトリクスエレメント P は実際には実験的に報告されている歪の無い場合の伝導帯底の有効質量 $m^*(E=0)$ を用いて $\varepsilon_{||}=0$ を代入した式(3-1)から逆算した値を用いている。この P の値は歪が加わると変化する可能性があるが、その影響は小さいと考え、無歪の場合の P を用いて歪のある場合のサブバンドの計算を行った。

C-2 構造作製中に生じる In の偏析

本研究では後述の理由から MBE 法を用いて量子井戸構造を作製した。MBE 法による In を含む InGaAs や InAlAs 等の混晶の結晶成長においては、条件によっては成長中に In が強く偏析することが一般に知られている。²⁵⁻³⁰⁾ 本構造では作製時に In 偏

析が生じると、InGaAs 井戸層の In 組成は設計値より小さくなり、偏析した In の存在により AlAs 障壁層は InAlAs となる。このような井戸・障壁材料の混晶組成の変化は量子井戸に形成されるサブバンドの量子化エネルギーおよび波動関数に大きな影響を与えることが予想される。以下に述べる簡単なモデルにより、In 偏析の影響を計算に取り入れた。

MBE における成長過程のある段階において表面層に存在する In 原子が、次の分子層が積層された際にある一定の確率(σ)で次の表面層中の非 In 原子と交換され、ある分子層の In 組成は次の分子層を積層した後に確定すると仮定する。このモデルは SIMS (secondary ion mass spectroscopy), PL (photo luminescence)等の測定結果とよく一致することが知られている。^{25,28)} このモデルを用いると、InGaAs 井戸層の設計 In 組成を x_0 とした時、基板側から数えて n ML 目の井戸層は次の分子層を積層した後、次式で表される In 組成 x_n の InGaAs となる。

$$\begin{cases} x_n = y_n(1 - \sigma(1 - x_0)) \\ y_{n+1} = y_n\sigma(1 - x_0) + x_0 \end{cases} \quad (3-9)$$

ここで y_n は n ML 目の層の次分子層を積層する前の In 組成であり、初期条件 y_1 は x_0 とした。続けて $x_0 = 0$ とすることで、同式を用いて障壁層を積層した際の各 InAlAs 分子層の In 組成を求めることができる。ただし、井戸層の上面、すなわち成長表面に近い側の障壁層との境界では、井戸層の In 原子は障壁層の Al 原子と交換するため井戸層は InGaAlAs となることを考慮する必要がある。交換確率 σ は実験的に求められた In 原子の偏析長 λ から $\sigma = a/2 \cdot \ln(\lambda)$ により求めた値を用いた。ここで a は格子定数である。また偏析長 λ はある層に In を挿入し、その上に In を含まない材料を積層した後 In 組成分布を観測したときの、In 組成が $1/e$ に減衰するまでの成長層厚で表わした偏析の強さを示すパラメータである。これは成長条件によって大きく変化し、特に成長温度および V/III 比に強く依存する。例えば、基板温度 380 °C 程度の場合 λ は数 Å、基板温度 550 °C, V/III 比 ~ 4 程度の場合は数十 Å の値を取るという報告がある。²⁸⁾ 量子化準位の計算を種々の λ に対してあらかじめ行うことで、サブバンド間遷移を短波長化する上での In 偏析に関する最適条件を検討できる。また、実際には In

の Ga に対する偏析確率と、Al に対する偏析確率には違いがあり、実際には後者の方が若干大きい²⁵⁾ここではその影響は小さいと考えて両者を等しいとして計算を行った。

C-3 計算の流れ

本量子井戸構造に形成されるサブバンドのエネルギーおよび波動関数を求める具体的な計算は以下の手順で行った。

- (1) 計算対象の量子井戸構造を一分子層を単位として分割し、式3-9を用いて In の偏析を計算して成長後の各分割層の混晶組成を求める。
- (2) 分割した割層を混晶組成に対応した均質な連続体と仮定し、歪によるバンド構造の変化や bowing parameter 等も考慮して有効質量 $m^*(E)$ と禁制帯幅 E_g を求める。
- (3) (2)で求めた各層の禁制帯幅から、伝導帯バンドオフセット比を用いて量子井戸ポテンシャルを計算する。バンドオフセット比は、GaAs/AlAs には 0.64、³²⁾ InAs/GaAs には 0.60 を用いた。^{28,30)} また InAs と AlAs のバンドオフセットは GaAs/AlAs および InAs/GaAs のバンドオフセットの和として求めた。
- (4) (2)で求めた有効質量と(3)で求めた量子井戸ポテンシャルから、各層の波動関数の転送行列を求め、各層の転送行列を量子井戸構造の一周期分かけ合わせ、周期的境界条件を用いて量子井戸に形成されるサブバンドのエネルギーと波動関数を求める。^{33,34)}

ここで用いた転送行列法とはある一定のポテンシャルおよび有効質量をもつ連続体中における、ある一定のエネルギーを持つ粒子の波動関数の伝搬を記述した行列である。異なる連続体の界面での反射、透過も考慮してあり、隣り合う連続体の転送行列を掛合せることで、この二つの連続体を通した波動関数の伝搬を計算できる。この転送行列を分割した各層について計算し、これらを順番に掛合せることで量子井戸構造全体での波動関数の伝搬を計算できる。そして、計算対象の構造全体を伝搬した後の波動関数の振幅の絶対値が、構造を伝搬する前と同じになるという条件、すなわち、

周期的境界条件を用いることでサブバンドが存在するエネルギーとその波動関数を求めた。この条件は計算対象の構造が無限に繰り返す存在する時に、その中を伝搬する波動関数が発散も減衰もせず、定在波となることを意味しており、多重量子井戸に対する準位の存在条件として適切であるといえる。実際にサブバンドの存在するエネルギーを求めるには、粒子のエネルギーを井戸の下端から上端まで細かく振りながら、毎回転送行列を計算し、周期的境界条件を満たすか否かを判定するという方法を用いた。

計算に用いたパラメータを表 3.2にまとめて示す。混晶の場合にはパラメータの性質によって線形平均や逆線形平均を用い、bowing parameter の分かっているものについては二次関数を用いて算出した。用いた算出方法も同表に示してある。

表 3.2: 計算に用いたパラメータ ^a

パラメータ	InAs	GaAs	AlAs	混晶の場合
E_g^0 [eV]	0.359	1.435	3.03	bowing parameter
Δ [eV]	0.36	0.34	0.275	linear
E_{gx} [eV]	1.37	1.91	2.153	linear
m^*_0 [m_0]	0.023	0.069	0.124	inverse linear
$m^*_{x//}$ [m_0]	1.98	1.98	1.56	inverse linear
$m^*_{x\perp}$ [m_0]	0.37	0.37	0.19	inverse linear
a_s [eV]	-2.5	-2.7	-2.6	linear
a_c [eV]	-1.8	-1.7	-1.5	linear
b_s [eV]	-4.1	-6.8	-6.3	linear
C_{11} [dyn/cm ²]	8.33	11.9	12.5	linear
C_{12} [dyn/cm ²]	4.53	5.38	5.34	linear

^a Landolt Börnstein Data Book

C-4 計算結果および考察

C-4-1 井戸構造とサブバンド間エネルギー

まず、In の偏析による量子井戸構造の設計値からのずれの無い、理想な場合の計算結果について述べる。計算対象としては井戸層の In 組成(x)が 0.1~0.5 で幅(W)が 5~20ML の InGaAs/AlAs 量子井戸構造を仮定し、障壁層幅(B)は隣接井戸間の結合が十分小さくなるように(後述)100Å とした。図 3.1にサブバンド間遷移エネルギーと井

戸層幅(W)の関係を井戸層の In 組成(x)をパラメータとして示す。同図から井戸幅が 6 ML 程度までは井戸幅の減少に従ってサブバンド間エネルギーが増加することが分かる。井戸幅が 6 ML 以下の領域でサブバンド間エネルギーが低下し始めるのは、第二サブバンドのエネルギーが障壁の上端に近くなるため閉じ込めが弱くなり、井戸幅が減少しても量子化エネルギーがあまり増加しなくなるためと考えられる。この井戸幅が 6 ML 以下の領域では、井戸層の In 組成が大きい、つまり井戸が深いほどサブバンド間エネルギーが大きくなっており、この考察を裏付けている。これに対して $W > \sim 6$ ML の領域では、第一、第二サブバンドの量子化エネルギーが小さく、In 組成が小さい場合でも井戸の深さが閉じ込めに十分であるため、In 組成の変化に対するサブバンド間エネルギーの変化は小さくなっている。むしろこの領域では、In 組成が大きくなると若干サブバンド間エネルギーが低下しているが、これは In 組成が大きいほどバンドの非放物線性が大きくなることの影響である。

ここで、短波長化の目標を半導体レーザの利用が可能な波長 $2\mu\text{m}$ 以下とするとサブバンド間エネルギー 620meV 以上が必要となり、同図からこれを達成するには井戸層の幅 9ML 以下の構造が必要であることが分かる。同図の結果のみから判断すると、 $2\mu\text{m}$ 以下程度の短波長化には井戸層の In 組成は小さくても問題が無いといえる。しかしながら第 5 章での検討では、井戸層に添加した電子の障壁層 X 端への漏れによるサブバンド間吸収強度の低下を抑える観点から、井戸層の In 組成を大きくする必要があることが示される。よって $2\mu\text{m}$ 以下程度の短波長化でも実際にはある程度の In 組成が必要となる。また、究極的に $1.55\mu\text{m}$ までの短波長化を目指すとするならば 800meV のサブバンド間エネルギーが必要となる。同図から予測すると、井戸幅を 5~6ML とし、かつ井戸層の In 組成を 0.5 とした場合でもサブバンド間エネルギーは 760meV 程度であり、 $1.55\mu\text{m}$ までの短波長化を目指すには井戸層の In 組成が 0.5 より大きい構造が必要となる。

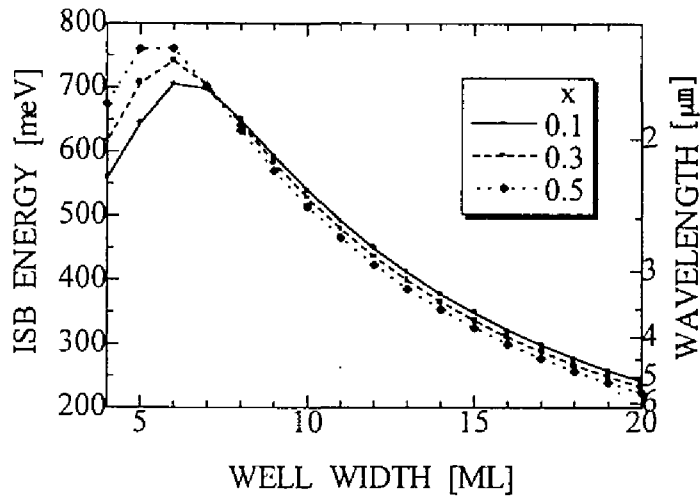


図 3.1: サブバンド間遷移エネルギーと井戸層幅の関係(In 偏析の無い場合)

C-4-2 障壁層厚と隣接量子井戸間の結合

本構造において障壁材料である AlAs 層は、その材料本来の性質から高品質な結晶を得ることが困難であり、特に次節で述べるように井戸材料の InGaAs の最適成長条件を優先して低温で成長した場合には品質の劣化が大きいと予想される。よって、構造設計の段階で AlAs 障壁層幅をなるべく狭く設定しておきたい。しかしながら、本研究で用いる多重量子井戸構造において障壁層幅が狭い場合、隣接する量子井戸間でサブバンドの結合が生じてミニバンド(mini band)が形成されサブバンド間遷移スペクトルに広がりが生じる可能性がある。³⁵⁾ そこで障壁層厚とミニバンド幅の関係を理論的に計算し、ミニバンドの広がりを抑えるために最低限必要な AlAs 層厚を検討した。サブバンド間エネルギー700meV 以上すなわち遷移波長 $1.8\mu\text{m}$ 以下が期待できる井戸層の幅 7ML かつ In 組成 0.3 の InGaAs/AlAs 量子井戸構造について、種々の AlAs 障壁層幅に対してミニバンドの上下端のエネルギーを計算した。その結果を図 3.2 に示す。同図から障壁層幅が狭くなるにつれてミニバンドの上端と下端のエネルギーが分裂してミニバンドの広がりが生じる様子が分かる。ミニバンドの広がりはず第 2

サブバンドで生じ、さらに障壁が狭くなると次に第 1 サブバンドの分裂が生じ始める。これは、第 2 サブバンドの方が第 1 サブバンドに比べてエネルギーが大きいため閉じ込めが弱く、隣接井戸との結合が容易なためといえる。同図の結果から障壁層幅を 25ML 程度以上にする事で、ミニバンドの広がりほぼ抑えることが可能と分かった。このことから、本節の理論的検討では、In 偏析により障壁層の平均的高さが低下する可能性等も考慮して、余裕を見て障壁層幅を 36ML とした構造を仮定して計算を行った。また、次節以降の実験的検討においても障壁層幅を 36ML とした構造を主に用いた。

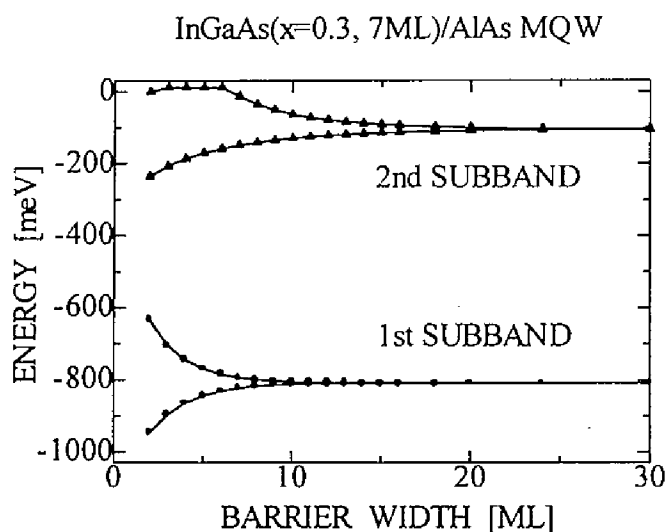


図 3.2: 障壁層幅とミニバンドのエネルギーの関係

C-4-3 · In 偏析の影響

前述のように、MBE 法における In の偏析長は成長条件によって数 Å から数十 Å まで大きく変化する。そこで量子井戸構造の作製条件を探るという点から、偏析長とサブバンド間エネルギーの関係を詳しく検討した。まず例としてサブバンド間遷移波長 2μm 以下を狙った井戸層の幅 9ML、In 組成 0.3、障壁層の幅 36ML の量子井戸構造を仮定し、In 組成の成長方向に沿った分布とそれに伴う井戸ポテンシャルを、偏析

が大きい場合(偏析長 $\lambda = 18 \text{ \AA}$)と無い場合($\lambda = 0 \text{ \AA}$)について計算した。両者を対比させて図 3.3に示す。ここで、偏析長 18 \AA は成長温度 $\sim 520^\circ\text{C}$ (V/III 比 ~ 10) 程度の高温成長時に報告されている値^{28,29)}であり、偏析長 0 \AA は成長温度 $\sim 400^\circ\text{C}$ (V/III 比 ~ 10)程度の低温成長時に期待できる値である。またこれは、後述の成長条件の検討で述べる本量子井戸構造の作製に適した温度領域で調整し得る偏析長の範囲である。図 3.3から偏析長 18 \AA の場合には井戸層に供給した In のうち約 25%が障壁層に偏析していることが分かる。その結果、井戸ポテンシャルは非対称な形となり、井戸層は平均的にみて約 30meV 浅くなっている。また前述のように、成長表面に近い側の井戸層と障壁層との界面では、偏析に伴って In と Al の交換が生じる。このため、井戸層の端が InGaAs から禁制帯幅の大きい InGaAlAs となり、井戸層の幅が実効的にほぼ 1ML 減少するという現象が生じている。

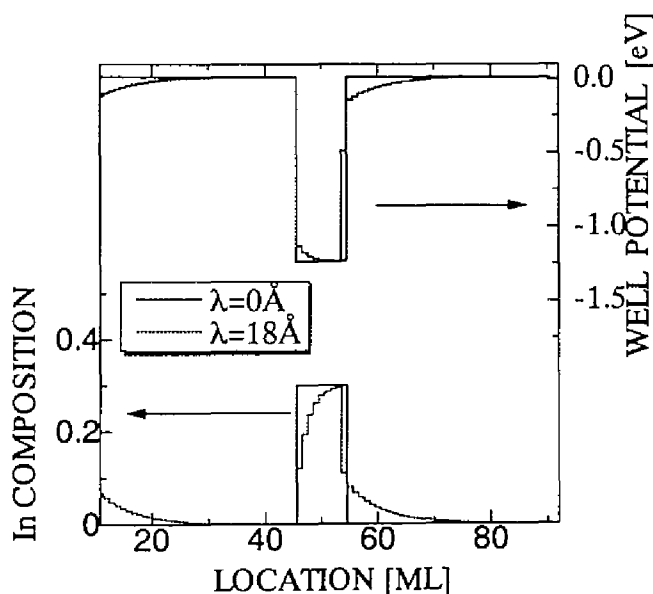


図 3.3: 偏析による In 組成分布の変化とそれに伴う井戸ポテンシャルの変化

つぎに、これらの偏析による井戸構造の変化が、形成されるサブバンドに及ぼす影響を検討するため、図 3.3 に示した量子井戸構造について第 1、第 2 サブバンドのエネルギーと波動関数を計算した。その結果を図 3.4 に示す。まず、同図から波動関数について偏析長が 18 \AA の場合と偏析長が 0 \AA の場合を比較すると、両者はほぼ同じであるが井戸ポテンシャルの変形のため前者は若干非対称になっていることが分かる。このため、サブバンド間遷移の双極子モーメントが低下することが予想される。この点については第 5 章において検討する。つぎに、サブバンドのエネルギーについて比較すると、偏析が大きい場合には第 1、第 2 サブバンドともに 60 meV 以上エネルギーが高くなっており、サブバンド間エネルギーも 30 meV 程度増加していることが分かる。これは前述した偏析によって (a) 井戸が約 30 meV 浅くなったことおよび (b) 実効的な井戸幅が 1 ML 減少したことの両者の影響によるといえる。また、第 5 章で詳しく検討するが、第一サブバンドのエネルギーの増加は、添加した電子の分布に大きな影響を与える。

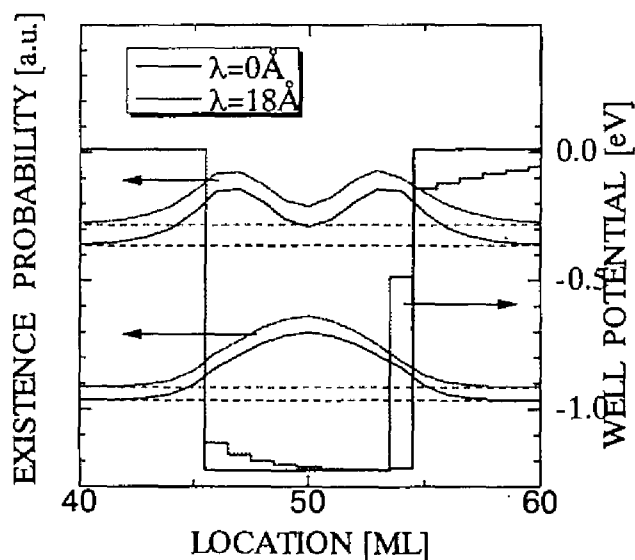


図 3.4: 偏析によるサブバンドのエネルギーおよび波動関数の変化

最後にサブバンド間遷移波長 $1.55\mu\text{m}$ を狙う In 組成 0.5 の量子井戸(障壁層幅は 36ML)に対して、In の偏析長 λ が 18\AA の場合と偏析長が 0\AA について井戸幅とサブバンド間エネルギーの関係を計算した。図 3.5に結果を示す。同図から、サブバンド間遷移波長 $1.8\mu\text{m}$ 以下を達成可能な井戸幅が 7ML 以下の領域では、偏析がある場合にサブバンド間エネルギーが大きく低下することが分かる。これは、以下のように説明できる。偏析があると図 3.3に示したように井戸が浅くなるため、第一サブバンドのエネルギーは高くなる。しかし、第二サブバンドは井戸幅が 7ML 以下の領域では、もともと偏析の無い場合においても障壁と同程度のエネルギーであるため、偏析によって井戸が浅くなってももはやエネルギーは増大しない。よって、第一サブバンドが高エネルギーになった分だけサブバンド間エネルギーは低下してしまう。このことから、サブバンド間エネルギー 700meV 以上つまり遷移波長 $1.8\mu\text{m}$ 以下の領域までの短波長化を試みるには、In の偏析を十分に抑える必要があることが分かった。これに対して、井戸幅が 8ML 以上の領域では偏析が大きい場合にサブバンド間エネルギーが増加しており、これは前述の 1 ML の実効的井戸幅の低下に起因していると考えられる。実際、図 3.5からこの領域では偏析長 18\AA の計算結果を井戸幅の小さい側に 1ML 平行移動すると偏析長 0\AA の結果とほぼ重なることが分かる。

C-4-4 まとめ

以上の検討から、目標が半導体レーザの利用可能なサブバンド間遷移波長 $2\mu\text{m}$ 程度である場合、井戸層の幅が 9ML 程度で障壁層の幅が 25ML 程度以上の構造で、偏析長が 18\AA 以下(成長温度 $<520\text{ }^{\circ}\text{C}$)の成長条件であれば、In 組成が 0.1 程度と小さくても目標は達成可能なことが予測される。また、究極的な目標としてサブバンド間遷移波長 $1.55\mu\text{m}$ 程度を狙うには、井戸層の幅が 5~6ML 程度で In 組成が 0.5 より大きく、障壁層の幅は 25ML よりも大きい構造が必要となり、かつ In の偏析長がほぼ 0 であるような成長条件が要求されるという結果が得られた。前者の条件は格子歪や偏析長の観点から考えても、比較的实现し易いといえるが、後者の条件の実現には成長方法等の工夫が必要になると考えられる。

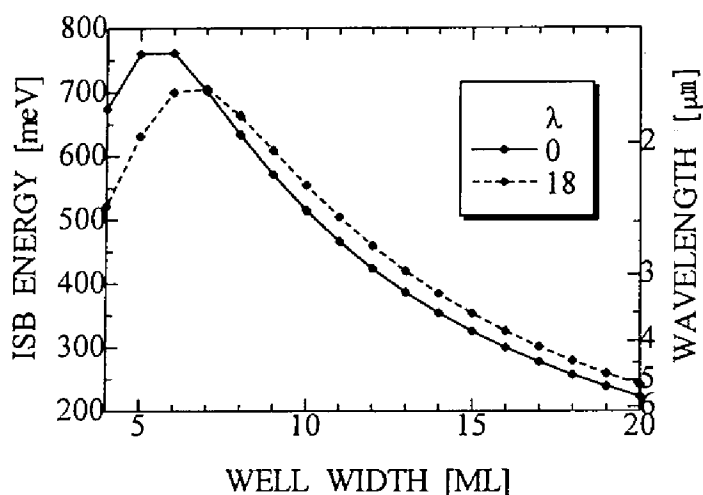


図 3.5: 偏析によるサブバンド間エネルギーと井戸幅の関係の変化

D 構造作製

D-1 成長方法

D-1-1 分子線エピタキシャル法

本研究では上記の検討の結果得られた GaAs 基板上の InGaAs/AlAs 量子井戸構造を実際に作成する方法として、分子線エピタキシー (molecular beam epitaxy, MBE) 法を用いた。MBE 法は超高真空中で行われる蒸着法的一种である。その基本的な装置構成は基板結晶とそれに対向した複数の分子線源であり、分子線源は結晶成長に用いる原料の入ったるつぼとその加熱機構および分子線を制御するシャッターによって構成されている。それぞれの原料元素ごとに独立した分子線源を準備し、放出される原料をシャッターで制御しながら対向する昇温された基板に供給することで、様々な化学組成の薄膜をエピタキシャル成長させることができる。この成長法は検討した構造を作製するうえで優位な以下の 3 つの特長を持つ。³⁶⁾

- (1) 分子線源のシャッターの開閉により原料供給を素早く制御できるため、成長の

開始・停止が瞬時に行える。このため急峻な異種接合界面の作製が可能である。

(2) 超高真空中の成長であるために、付属の各種分析装置によって成長表面状態や成長環境等をその場観察できる。特に成長に伴う反射高エネルギー電子線回折 (reflection high energy electron diffraction, RHEED) 輝度振動の観察から、成長の速度をその場で測定できる。

(3) 超高真空中での成長であるために、成長層に取り込まれる不純物量を十分に抑えつつ、成長速度を1分子層/秒以下まで遅くすることができる。よって(2)の特長と合わせることで分子層単位での成長膜厚の制御が可能である。

これらの特長から、MBE 法は本研究で必要とされる井戸幅が 10ML 程度以下の非常に狭い量子井戸構造の作製に適した成長方法といえる。

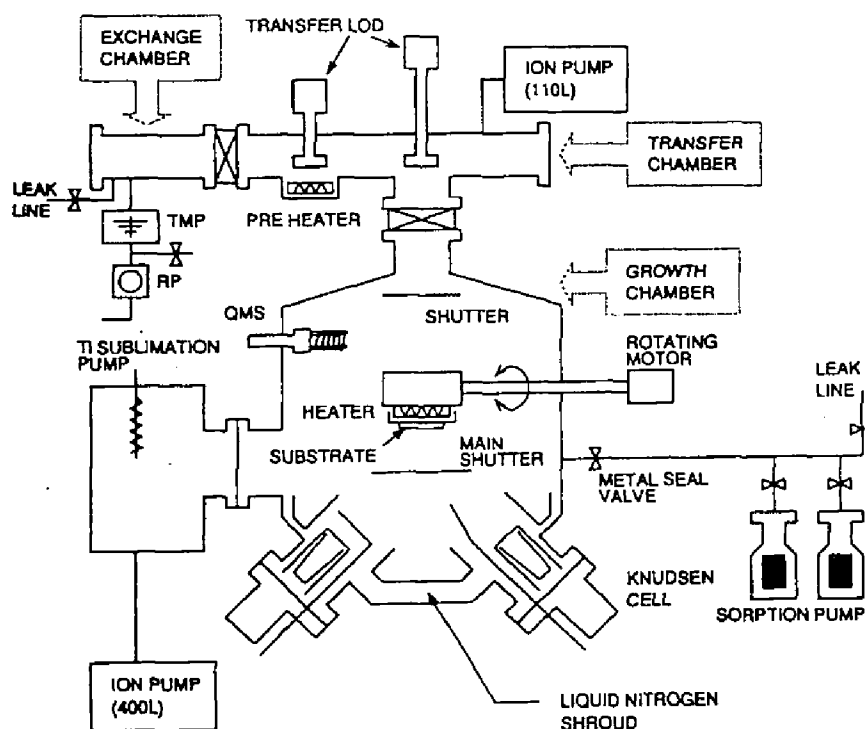


図 3.6: MBE 装置の概略

D-1-2 成長装置

本研究で用いた MBE 装置は ANELVA 製 MBE-830S 型固体ソース(source)MBE 装置である。その概略図を図 3.6 に示す。装置は成長室、搬送室、および導入室の 3 室によって構成されている。各室はゲートバルブ(gate valve)によって仕切られており、それぞれに排気ポンプが設けられている。成長室には分子線源であるクヌーセンセル(Knudsen-cell, K-cell)と基板加熱機構からなる成長装置があり、その場観察のための RHEED システムおよび四重極質量分析計(quadra-pole mass spectroscopy, QMS)が付属している。超高真空を得るための排気系として、成長室にはイオンポンプ(ion pump) およびチタンサブレーションポンプ(Ti sublimation pump)が設置されている。さらに成長時には液体窒素シュラウド(shroud)を用いて高温に加熱された分子線源からの脱ガスを防ぐことで 10^{-10} Torr 台の背景真空度を達成している。分子線源としては V 族の砒素(古川機械工業製、純度 6N)、III 族のアルミニウム(アルファ社製、純度 6N)、ガリウム(住友化学製、純度 7N)、インジウム(日本鉱業製、純度 7N)、および不純物としてシリコン(純度 10~11N)、ペリリウム(純度 10~11N)を持つ。よって n,p 型を含む、AlAs, InGaAs 等の成長が可能である。搬送室は基板の移送機構、および予備加熱機構を備えている。また排気装置としてイオンポンプが設けられており、通常 10^{-8} Torr 台の真空度に保たれている。導入室は成長室および搬送室を超高真空に保ったまま、高真空から大気圧に戻すことや、逆に大気圧から高真空に排気することができ、このため系全体の真空を破らずに基板を搬送室、成長室に導入することが可能になっている。排気機構としてはターボ分子ポンプを用いており、 10^{-7} Torr 台の到達真空度を持つ。

D-1-3 成長手順

本研究では以下の MBE 法において一般的な成長手順を用いて試料となる量子井戸構造を作成した。

1. 基板は、まず有機溶媒に浸して超音波洗浄する。つぎに硫酸:過酸化水素:水=5:1:1(体積比)のエッチング液で 60°C において 60 秒間エッチングを行う。エッチングの停止は脱イオン水中で行い、この過程で形成される酸化膜を保護膜として用

いる。最後に基板をインジウムによって基板ホルダーに貼り付ける。

2. 基板ホルダーは導入室から MBE 装置内に取り込み、導入室を排気した後に搬送室に移す。搬送室において、成長直前に基板ホルダーを予備加熱して、基板や基板ホルダーに吸着されている残留ガスを放出させる。予備加熱は 400 °C で背景真空度が 10^{-8} Torr 台になるまで行う。
3. 予備加熱を終えた基板ホルダーを成長室に導入し、昇温を開始する。基板温度が 400 °C を超えた時点で、基板からの As の脱離を防ぐため、 3×10^{-6} Torr 以上の As 分子線を照射し、さらに基板表面の酸化膜が除去される 600 °C 程度まで昇温する。
4. 基板温度 600 °C において厚さ 0.1~0.3 μm の GaAs 緩衝層を積層する。その後、基板温度を目的の成長温度に設定し、計算機により各分子線源のシャッターの開閉時間を制御することで量子井戸層を積層する。さらに、表面保護層として厚さ 100~200 Å 程度の GaAs 層を積層する。
5. As 分子線のみを照射しながら基板温度を徐々に下げ、400 °C 以下になった時点で As 分子線の照射を停止する。その後、基板を搬送室に移して、十分温度が低下した後導入室より取り出す。

また、成長に用いた GaAs 基板は水平ブリッジマン(HB)法 CrO 添加半絶縁性基板あるいは Si 添加 n 型基板であり、面方位は(100)である。n 型基板としてはキャリア密度が $2.7 \sim 3.3 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ の基板を用いた。

D-2 成長条件

MBE 法によって作製される結晶の特性は、成長時の基板温度および V/III 比等の条件に強く影響され、また作製する結晶の種類によって最適な条件はかなり異なる。本研究でサブバンド間遷移の短波長化のために新たに導入した GaAs 基板上的 InGaAs / AlAs という材料系については、ほとんど検討例がないため適切な成長条件が判明していない。しかしながら、InGaAs および AlAs 単体の最適成長条件については種々の報告があり、以下のようにまとめることができる。

[InGaAs] 最適成長温度は In 組成に依存するものの、一般に 520 °C 以下である。³⁷⁻⁴⁰⁾ また成長中の In 偏析を抑制するには、成長温度をさらに 400 °C 程度まで低くし、

V/III 比は 10 以上まで高くする必要がある。²⁸⁾

[AlAs] 最適成長温度は 650 °C 以上と高い。また V/III 比は As 安定面を維持可能な最低比程度にまで低くすることが望ましい。⁴²⁻⁴⁴⁾

ここに示した InGaAs と AlAs の最適成長条件とを比較すると、両者は大きく異なっており整合性の悪い材料系であることが分かる。特に成長温度の違いから、井戸および障壁材料を同時に結晶性よく成長させることは困難と考えられる。加えて、上述の理論計算による検討から、サブバンド間遷移の短波長化には成長時の In 偏析をできるだけ抑制することが望ましいとの結果も得られており、この点についても考慮する必要がある。そこで、これらの諸条件を満たす適切な成長条件を検討するため、成長条件をフォトルミネセンス(photo luminescence, PL)法による評価を用いて詳しく検討した。

D-2-1 境界温度領域

InGaAs と AlAs を同時に結晶性よく成長させる条件を調べるには、まず両者の最適成長条件が接近する領域を検討する方法が妥当と考えられる。そこで、以下に示す三種類の成長温度条件について実験的に検討した。成長温度として

(A) InGaAs 層、AlAs 層ともに InGaAs 層に適合した成長温度 520 °C

(B) InGaAs 層、AlAs 層ともに AlAs 層により適合した成長温度 580 °C

(C) InGaAs 層は 520 °C、AlAs 層は 580 °C と、各々により適合した成長温度の 3 条件を用い、不純物無添加の井戸層幅 13ML、In 組成 0.3 かつ障壁層幅 36ML の InGaAs / AlAs (以後 $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ (13ML) / AlAs (36ML) のように表記する) 単一量子井戸からなる試料を作製し、PL 測定による評価を行った。その他の成長条件としては、V/III 比は In 偏析を抑えるために 12 程度と大きくし、成長速度は $\sim 0.34 \mu\text{m/h}$ (3 s/ML) とした。作製した(A),(B)および(C)の 3 つの試料に対する PL 測定結果を図 3.7に示す。測定条件は測定温度:77K、励起強度:約 100 W/cm^2 である。

同図からまず、(A)と比較して(B)は 100meV 程度高エネルギー側に発光ピークを持つことが分かる。これは 580 °C という高温で成長した(B)では In の偏析が非常に大きくなり、量子井戸構造が図 3.4に示した以上に変化したためと考えられる。前述の

ように、サブバンド間遷移の短波長化には In の偏析の抑制が重要なことを考慮すると、In の偏析が大きい(B)の方法は不適切であるといえる。また同図から、(A)と比較して (C)は発光強度が 10 分の 1 程度と小さいことが分かる。(C)の条件では井戸層と障壁層とで成長温度が異なるので、各層を積層後に界面を露出したまま基板温度を変更する方法を用いた。この温度変更には 2~3 分の時間を要し、この間に不純物が界面、特に酸素との反応性の高い AlAs の表面に取り込まれるため、^{45,46)} 発光強度が低下するものと考えられる。この結果から、高温で結晶性の良い AlAs を積層するにもかかわらず、界面に不純物を取り込まれてしまう(C)よりも、低温で AlAs 層を積層する(A)の方が適切な成長方法と分かった。以上から検討範囲内では、InGaAs/AlAs 量子井戸の作製条件として 520 °C 程度の低い基板温度で InGaAs 層、AlAs 層の両方を積層する(A)の方法が最適と分かった。

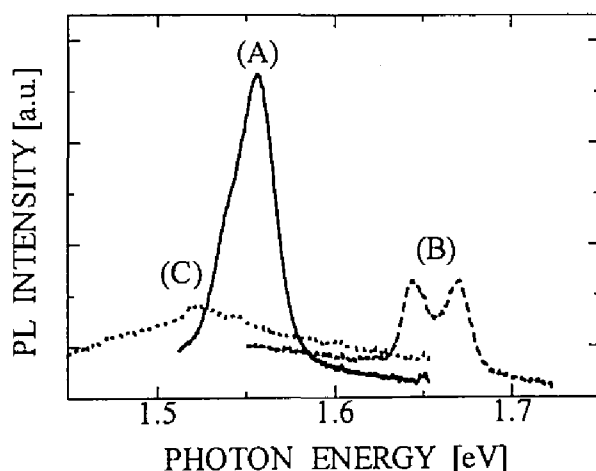


図 3.7: PL 測定による成長温度条件の検討

D-2-2 低温領域

前述の(A)の条件から、さらに成長温度を下げることで、In の偏析を抑える条件を検討した。成長温度 520 °C, 480 °C および 400 °C を用いて、In_{0.2}Ga_{0.8}As (11 ML) / AlAs (36 ML)多重量子井戸(10 周期)を作成し、PL 測定をおこなった。測定条件は測定温度:10K 程度、励起光強度:約 100 W/cm²である。その結果を図 3.8に示す。同図

から、成長温度が低下するに従って、PL 発光ピークが低エネルギー側に移動することが分かる。これは基板温度を下げることで In 偏析が抑制され、図 3.4 の例のように井戸層の平均 In 組成が増加して禁制帯幅が減少したためと考えられる。図 3.8 に示した成長温度 520 °C と 400 °C の試料の発光エネルギーをスペクトルの中心で比較すると、両者の差は 45 meV 程度である。発光エネルギーの変化から In 偏析長の変化を見積もるために、この試料構造に対し種々の偏析長を仮定して前述の方法でバンド間発光エネルギーを計算した。その結果、この 45 meV 発光エネルギーの変化は偏析長の 18 Å から 0 Å への変化で説明できることが分かった。このことから、成長温度 520 °C で 18 Å 程度を示す In 偏析長を、成長温度を 400 °C へ下げることでほぼ 0 Å まで抑制できることが分かった。

図 3.8 に示した発光スペクトルは、基板温度によっては複数の発光ピークが重なり合う形状となっている。これらの発光スペクトルをガウス関数を用いて分離すると同程度の半値幅を持つ 2~4 個のピークから構成されていることが分かった。分離結果は図 3.8 に破線で示してある。これらのピークのエネルギー間隔を理論計算結果と比較すると、これは 1 ML の井戸幅の変化に対応することが分かった。通常の MBE 法による成長では原理的に ± 1 ML 程度の成長膜厚の不均一があることが知られており、測定試料の井戸幅が 11 ML と一般の量子井戸に比べて小さいため、試料面内での井戸層幅不均一性の影響が強く表れているものと考えられる。このような、井戸幅の不均一性はサブバンド間吸収スペクトルの幅に大きな影響を与える可能性がある。つぎに、各成長温度の試料で分離されたピークのうち、最大強度を示すピークの半値幅を調べた。その結果を表 3.3 に示す。同表からピークの半値幅は基板温度が低下するに従って単調に増大しており、基板温度 520 °C の場合と 400 °C の場合とを比較すると、半値幅は約 1.5 倍に増加していることが分かる。この発光ピーク半値幅の増加は低温成長による結晶性の悪化によるものと考えられる。よって、400 °C 程度での低温成長では In 偏析は抑制できるものの、発光特性に関してある程度の結晶性の悪化が生じることが分かった。しかしながら第 4 章において、この結晶性の悪化はサブバンド間遷移に与える影響は小さいことが示される。

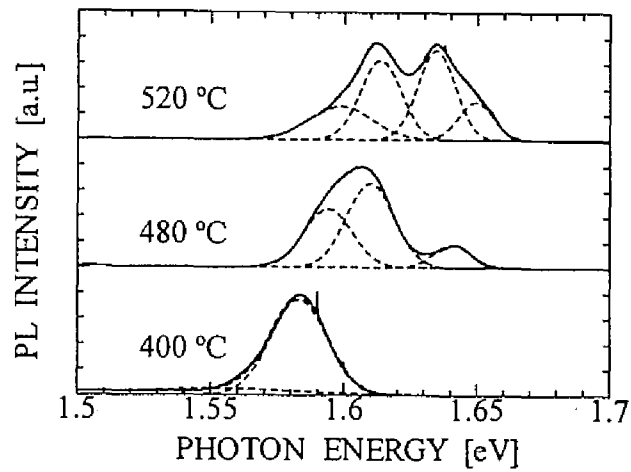


図 3.8: PL測定によるIn 偏析を抑えるための成長温度条件の検討

表 3.3: 成長温度と PL ピーク半値幅の関係

成長温度 [°C]	PL ピーク半値幅 [meV]
520	17
480	21
400	25

E まとめ

本章では半導体量子井戸におけるサブバンド間遷移を半導体レーザが利用可能な $2\mu\text{m}$ 以下程度まで短波長する方法を検討した。短波長化には深い量子井戸すなわち伝導帯バンドオフセットの大きな材料系が要求され、またデバイス応用の観点からは多重量子井戸構造が形成可能であることも重要である。これらの点を考慮して、バンドオフセットおよび格子不整合度の観点から、基板も含めて材料系を詳しく検討し、

GaAs 基板上の InGaAs/AlAs という新たな独自の系を選択した。つぎに詳細な理論計算に基づき、短波長化に必要とされる具体的な量子井戸構造を検討した。この検討により、サブバンド間遷移波長を $2\mu\text{m}$ 以下まで短波長化するには井戸層の幅 9ML 程度以下かつ障壁層幅が 36ML 程度の構造が必要との予想結果が得られた。また、究極的に $1.55\mu\text{m}$ までの遷移波長の短波長化を目指すには、井戸層の幅が 5~6ML 程度かつ In 組成が 0.5 より大きな構造が必要であり、さらに構造作製時に生じる In 偏析をできる限り抑制する必要があることを示した。

つぎに、計算で予想された量子井戸構造を実際に作製する方法を検討した。まず、10 ML 以下の微細な構造を作製するという点から、分子層単位での膜厚制御の可能な MBE 法を選択した。しかし、GaAs 基板上の InGaAs/AlAs という材料系の MBE による成長はほとんど検討されたことがなく、各材料の最適成長温度の違いが大きいという問題点があった。そこで、種々の条件で InGaAs/AlAs 量子井戸を作製し、その PL 発光スペクトルを比較することで最適成長条件を検討した。その結果、成長中に基板温度を変更して InGaAs および AlAs のそれぞれに最適な基板温度で成長を行うより、温度変更を行わず InGaAs 層に合わせた 520°C 程度以下の低い成長温度で両層を連続して成長する方がよいことが分かった。また 12 程度の高い V/III 比を用い、基板温度を 400°C 程度まで下げることで In 偏析をほぼ完全に抑制できるが、成長温度を 520°C よりも低くすることはバンド間発光に関する結晶性の悪化を招くことが分かった。

参考文献

- ¹ T. Suzuki, T. Mituyu, K. Nishi, H. Ohyama, T. Tomimasu, S. Noda, T. Asano, and A. Sasaki: Appl. Phys. Lett. 69, 4136 (1996).
- ² 小林孝嘉: 物理学最前線第 30 巻 調短光パルスレーザとその物理学への応用、大槻義彦 編、(共立出版社、東京、1993)
- ³ 角野 雅芳、牧田 紀久夫、玉貫 岳正、日野 功、五明 明子、北村 光弘、第 42 回応用物理学関係連合講演会予稿集(1995)、29p-ZG-17, p. 1087.
- ⁴ J. Dong et al.: Electron. Lett. 33, 1090 (1997)
- ⁵ 生方 映徳、Jie Dong, 松本 功: 第 58 回応用物理学会学術講演会予稿集(1997)、2p-ZC-14, p. 1079.
- ⁶ B. F. Levine, A. Y. Cho, J. Walker, R. J. Malik, D. A. Kleinman, and D. L. Sivco: Appl. Phys. Lett. 58, 1092 (1991).
- ⁷ H. Asai and Y. Kawamura: Appl. Phys. Lett. 56, 746 (1990).
- ⁸ H. C. Chui, S. M. Lord, E. Martinet, M. M. Fejer, and J. S. Harris, Jr.: Appl. Phys. Lett., 63, 364 (1993).
- ⁹ H. C. Chui, E. L. Martinet, M. M. Fejer, and J. S. Harris, Jr.: Appl. Phys. Lett., 64, 736 (1994).
- ¹⁰ L.-H. Peng, J. H. Smet, T. P. E. Broekaert, and C. G. Fonstad: Appl. Phys. Lett., 61, 2078 (1992).
- ¹¹ Y. Hirayama, J. H. Smet, L.-H. Peng, C. G. Fonstad, and E. P. Ippen: Appl. Phys. Lett., 63, 1633 (1993).
- ¹² J. H. Smet, L.-H. Peng, Y. Hirayama, and C. G. Fonstad: Appl. Phys. Lett., 64, 986 (1994).
- ¹³ Y. Hirayama, J. H. Smet, L.-H. Peng, C. G. Fonstad, and E. P. Ippen: Jpn. J. Appl. Phys. 33, 890 (1994).
- ¹⁴ L. C. West and E. G. Eglash: Appl. Phys. Lett. 46, 1156 (1985).
- ¹⁵ Z. Ikonc, V. Milanovic, and D. Tjapkin: Appl. Phys. Lett. 54, 247 (1989).
- ¹⁶ 鈴木信夫、飯塚紀夫: 第 44 回応用物理学関係連合講演会予稿集(1997)、28p-NE-7, p. 1024.
- ¹⁷ 鈴木信夫、飯塚紀夫: 第 58 回応用物理学会学術講演会予稿集(1997)、4-p-ZB16, p. 1123.
- ¹⁸ 菊池昭彦、岸野克巳: 第 58 回応用物理学会学術講演会予稿集(1997)、5a-R-9, p. 401.

- ¹⁹ 赤崎 勇: III - V 族化合物半導体 (培風館、東京、1994), p.221.
- ²⁰ S. Hiyamizu, T. Fujii, S. Muto, T. Inata, Y. Nakata, Y. Sugiyama, and S. Sasa: J. Crystal Growth 81, p.349 (1987).
- ²¹ 池上 徹彦、土屋 治彦、三上 修: 半導体フォトニクス工学 (コロナ社、東京、1995), p.325.
- ²² A. Persson and R. M. Cohen: Phys. Rev. B 38, 5568 (1988).
- ²³ U. Ekenberg: Phys. Rev. B 40, 7714 (1989).
- ²⁴ M. Sugawara, N. Okazaki, T. Fujii, and S. Yamazaki: Phys. Rev. B 48, 8102 (1993).
- ²⁵ J. M. Moison, C. Guille, F. Houzay, F. Barthe, and M. van Rompay: Phys. Rev. B 40, 6149 (1989).
- ²⁶ H. Yamaguchi and Y. Horikoshi: J. Appl. Phys. 68, 1610 (1990).
- ²⁷ M. Sato and Y. Horikoshi: J. Appl. Phys. 69, 7697 (1991).
- ²⁸ K. Muraki, S. Fukatsu, and Y. Shiraki: Appl. Phys. Lett. 61, 557 (1992).
- ²⁹ H. Toyoshima, T. Niwa, J. Yamazaki, and A. Okamoto: Appl. Phys. Lett. 63, 821 (1993).
- ³⁰ P. Disseix, J. Leymarie, A. Vasson, A.-M. Vasson, C. Monier, N. Grandjean, M. Leroux, and J. Massies: Phys. Rev. B 55, 2406 (1997).
- ³¹ T. P. Pearsall: *Semiconductor and Semimetals Vol. 32, Strained Layer Superlattices: Physics*, edited by T. P. Pearsall, (Academic Press, Boston, San Diego, New York, London, Sydney, Tokyo, and Toronto, 1990), p. 31.
- ³² J. Bandet, G. Bacquet, F. Fabre, J. Frandon, and R. Taouint: J. of Appl. Phys. 69, 2532 (1991).
- ³³ L. R. Ram-Mohan, K. H. Yoo, and R. L. Aggarwal: Phys. Rev. B 38, 6151 (1988).
- ³⁴ B. Chen, M. Lazzouni, and L. R. Ram-Mohan: Phys. Rev. B 45, 1204 (1992).
- ³⁵ R. Duer, I. Shtrichman, D. Gershoni, and E. Ehrenfreund: Phys. Rev. Lett. 78, 3919 (1997).
- ³⁶ 権田俊一 編著: 分子線エピタキシー (培風館、東京、1994).
- ³⁷ E. G. Scott, S. T. Davey, M. A. G. Halliwell, and G. J. Dacies: J. Vac. Sci. Technol. B 6, 603 (1988).
- ³⁸ J. M. Ballingall, P. Ho, P. A. Martin, G. J. Tessmer, T. H. Yu, N. Lewins, and E. L. Hall: J. of Electronic Materials 19, 509 (1990).
- ³⁹ N. Grandjean, J. Massies, C. Delamarre, L. P. Wang, A. Dubon, and J. Y. Laval: Appl. Phys. Lett. 63, 66 (1993).

- ⁴⁰ M. T. Emeny, M. S. Skolnick, C. R. Whitehouse, D. G. Hayes, P. D. Calcott, and A. W. Higgs: *Appl. Phys. Lett.* **63**, 824 (1993).
- ⁴¹ N. D. Zakharov, Z. Liliental-Weber, and W. Swider: *Appl. Phys. Lett.* **63**, 2809 (1993).
- ⁴² H. Morkoc, T. J. Drummond, W. Kopp, and R. Fischer: *J. Electrochem. Soc.: Solid State Science and Technology* **129**, 824 (1982).
- ⁴³ J. E. Cunningham, W. T. Tsang, T. H. Chiu, and E. F. Schubert: *Appl. Phys. Lett.* **50**, 769 (1987).
- ⁴⁴ S. V. Ilyer, H. P. Meier, S. Ovadia, and C. Parks: *Appl. Phys. Lett.* **60**, 416 (1992).
- ⁴⁵ R. Köhrbrück, S. Munnix, D. Bimberg, D. E. Mars, and J. N. Miller: *Appl. Phys. Lett.* **57**, 1025 (1995).
- ⁴⁶ T. Someya, H. Akiyama, Y. Kadoya, T. Noda, T. Matsusue, H. Noge, and H. Sakai: *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1924 (1993).

第4章 GaAs 基板上 InGaAs/AlAs 量子井戸による サブバンド間遷移の短波長化

A はじめに

本章では第 3 章での理論的検討によって得られたサブバンド間遷移短波長化に必要な構造を作製し、そのサブバンド間遷移波長を赤外光吸収法により測定する。実際にどの程度まで短波長化が可能かを探るため、井戸層の幅、井戸層の In 組成および成長温度の異なる種々の試料を作製し、その赤外光吸収特性を理論計算結果と比較する。また、試料の赤外光吸収スペクトルから、遷移波長だけでなく、偏光特性、スペクトル幅などについても実験結果を理論計算と比較しつつ検討し、短波長化サブバンド間遷移の特性について詳細に調べる。

B 試料構造および測定方法

B-1 試料

試料は第 3 章の結果をもとに MBE 法により作製した GaAs 基板上的 InGaAs/AlAs 多重量子井戸である。その構造を図 4.1 に示す。試料の障壁層幅を 36ML に固定し、可変要素として、井戸層幅を 7~13 ML、井戸層の In 組成を 0.2~0.4、そして成長温度を 400~500 °C と条件を振った種々の試料を作製した。試料中の多重量子井戸総数は 10~30 個である。また、第一サブバンドに電子を供給してサブバンド間遷移の利用を可能にするため、n 型不純物として Si を井戸層のみに $1 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ 程度添加した。作製条件は第 3 章での検討をもとに、V/III 比として ~10 程度、成長速度として InGaAs 層および AlAs 層ともに 0.33 ML/s を用いた。

試料が設計通りに作製されていることを確認するため X 線回折による構造解析を行った。 θ - 2θ 法測定結果の一例を図 4.2 に示す。測定対象は井戸層厚 9, 11, 13 ML の 3 つの試料であり、井戸層の In 組成は 0.2、多重量子井戸の総数は 10 個である。同図からサテライトピーク(satellite peak)が 5 次まで確認でき、良好な多重量子井戸が作製できていることが分かる。また、サテライトピークの間隔から求めた¹⁾多重量子井戸

の繰り返し周期の実測値と設計値を対比させて表 4.1に示す。この表から、最大でも誤差 1.6\AA ($\sim 0.6\text{ ML}$)以下で設計通りの構造が作製できていることが分かる。繰り返し周期の誤差は井戸層厚と障壁層厚の誤差の両者から生じるが、障壁層厚は第 3 章で示したようにミニバンドの形成を防ぐため 10ML 程度厚目に設計したので 0.6ML 程度の誤差は十分許容できる。これに対して井戸層幅のずれは、そのままサブバンド間遷移波長のずれとなるので許容度が小さい。ここで井戸層と障壁層の厚さの比が 1:4 程度であることから、井戸層厚の誤差は繰り返し周期の誤差の 1/4 程度と考えられるので、0.15 ML 以下と考えられる。第三章での理論計算結果から井戸層幅 1ML の変化はサブバンド間エネルギーの 35meV の変化に対応するので、0.15 ML の誤差は 5meV 程度のずれとなる。サブバンド間遷移波長が $2\mu\text{m}$ 以下(エネルギー600meV 以上)の領域を想定しているので、5meV 程度のずれは 1%程度の遷移波長のずれにしか相当しないため、十分許容範囲に入っているものといえる。他の作製試料についても同様に、X 線回折測定から良好な多重量子井戸が作製できていることが確認されている。

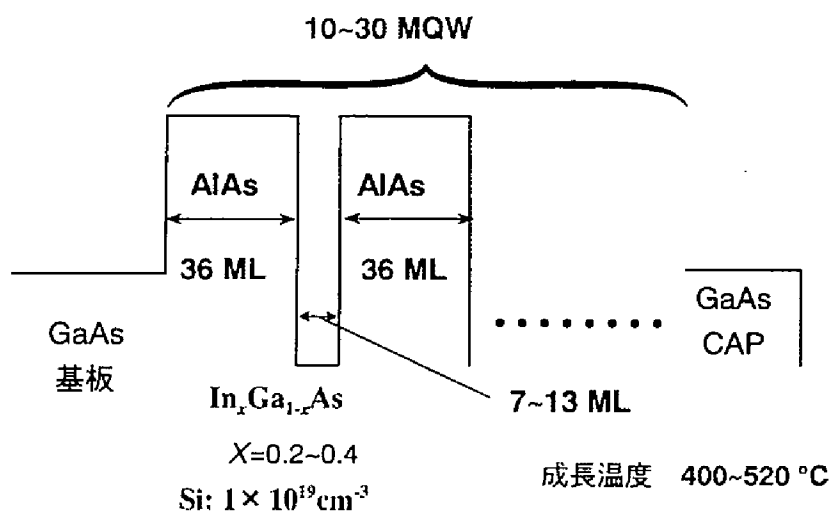


図 4.1: 試料構造

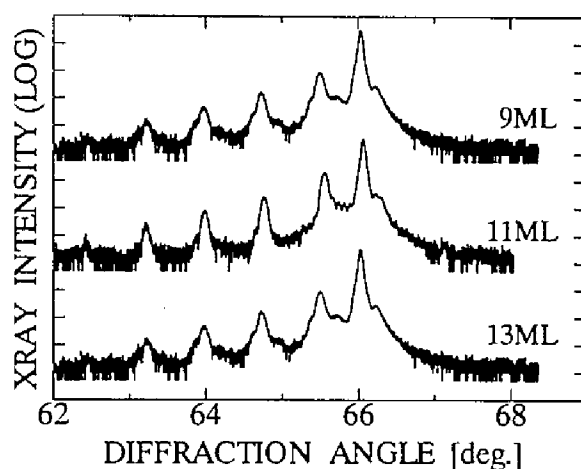


図 4.2: θ - 2θ 法による X 線回折測定結果の一例

表 4.1: 多重量子井戸繰り返し周期の実測値と設計値

井戸幅 [ML]	井戸層の繰り返し周期 [Å]		
	測定値	設計値	誤差
9	128.2	128.0	+0.2
11	132.8	133.7	-0.9
13	136.8	139.4	-1.6

B-2 測定系

n 型不純物添加量子井戸では、図 4.3に示すように、n 型不純物から放出された電子が第 1 サブバンドに存在している。ここで、第 1-第 2 サブバンド間のエネルギーと同程度の光子エネルギーの光が n 型量子井戸に入射された場合を考える。入射光はサブバンド間遷移の電気双極子モーメントによって第一サブバンドの電子と結合し、電子分極が生じる。この電子分極は入射光のエネルギーを吸収して増大し、第 1 サブバンドから第 2 サブバンドへの電子の励起が生じる。サブバンド間遷移の電気双極子モーメントは、サブバンドの包絡波動関数から決まる量子井戸内の電子の平均的存在

位置が第 1 第 2 サブバンドで異なることから生じるため、空間ベクトルとして量子井戸の成長方向成分のみを持つ。²⁾ このため、サブバンド間の電子分極は入射光の電界のうち成長方向に向いている成分(TM 偏光成分)によってのみ生じ、光の井戸層面内方向の電界成分(TE 偏光成分)では生じない。つまり、サブバンド間吸収は TM 偏光特性を持つといわれている。もっとも、最近の報告では量子井戸を作製したことによって生じる価電子帯と伝導帯間のバンド混合効果によって TE 偏光特性も生じ得るとの議論もあり、^{3,7)} この点については後で詳しく検討する。

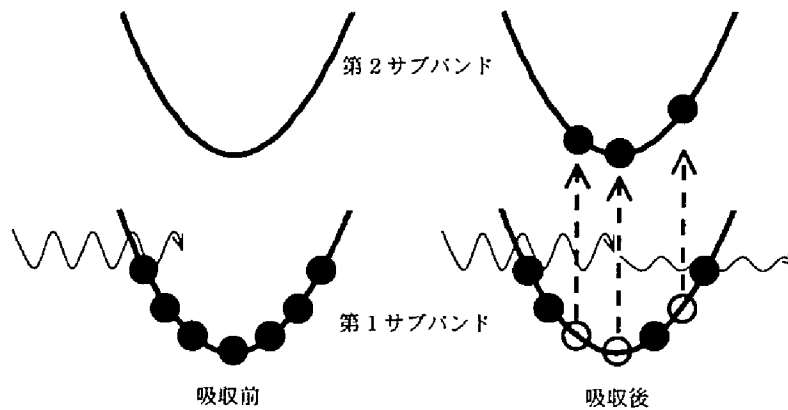


図 4.3: n 型量子井戸におけるサブバンド間吸収

また密度行列を用いた解析によりサブバンド間吸収の大きさを定量的に求めると、その吸収係数を次式で表すことができる。⁸⁾

$$\alpha(\omega) = \omega \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon}} \frac{|M_{ISB}|^2 (n_1 - n_2) \cdot \hbar / \tau_{phase}}{(E_{ISB} - \hbar\omega)^2 + (\hbar / \tau_{phase})^2} \quad (4-1)$$

ここで ω は入射する光の角周波数、 μ は透磁率、 ε は誘電率、 \hbar はプランク定数を 2π で割った値である。また、 E_{ISB} は第 1-第 2 サブバンド間のエネルギー、 M_{ISB} はサブバンド間の双極子モーメント、 n_1 および n_2 はそれぞれ第 1 および第 2 サブバンドに存在する電子の密度、 τ_{phase} はサブバンド間の電子分極の位相緩和時間である。この式から

サブバンド間吸収の理想的スペクトル形状としては、サブバンド間エネルギーを中心とする、半値幅 $2\hbar/\tau_{\text{phase}}$ のローレンツ曲線になることが分かる。実際にはこれに後述する種々の影響が加わって、ピーク幅はもっと広がると考えられる。

赤外光吸収測定に用いた装置の概略を図 4.4に示す。赤外光源にはハロゲンランプを、分光には 0.25m のツエルニ・ターナー(Zerni-Tarner)型分光器を、そして赤外光の検出には PbS 光伝導型光検出器を用いた。赤外光はワイヤー・グリッド(wire grid)型偏光子により直線偏光に変換し、偏光方向によるサブバンド間吸収の特性の違いを調べた。S/N 比の向上を図るため、赤外光をチョッパ(chopper)によって矩形波に変調し、光検出器の出力をチョッパからの参照信号をもとにロックインアンプ(rock in amplifier)によって交流増幅することで雑音を低減した。また、分光器の一次回折光に重畳する二次の回折光を除くための倍波カット・フィルタ(filter)として、波長 $1.6\mu\text{m}$ 以下の光を除去する単結晶 Ge 板、または波長 $1.0\mu\text{m}$ 以下の光を除去する色ガラスフィルタ(半導体微粒子入りガラス板)を用いた。この 2 種のフィルタは波長域によって使い分け、波長 $1.6\sim 3.2\mu\text{m}$ の測定では前者を、波長 $1.0\sim 2.0\mu\text{m}$ の測定では後者を用いた。

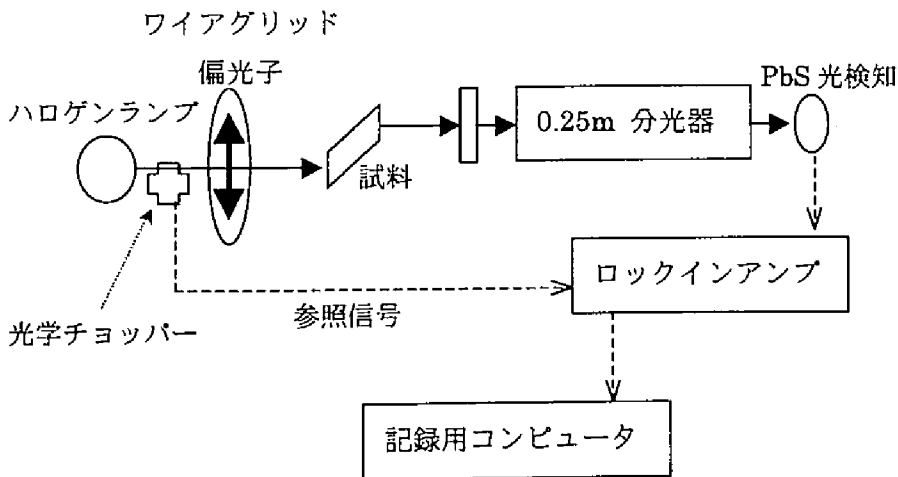


図 4.4: 赤外光吸収測定系

測定は図 4.5に示すように、基板裏面を鏡面加工したうえで、両端面を 45°に切り出し、同じく鏡面加工した試料を用いて行った。^{9,10)} この方法は、(a)量子井戸層を何度も光が透過するためサブバンド間吸収量が大きく観測が行いやすい、および(b)偏光方向を変えても表面入射方式で見られるような光の直接的な干渉が生じないので偏光特性を測定しやすいという二つの利点がある。多重反射によって端面から試料中に入った赤外光は成長層表面および基板裏面で反射されながら試料内を伝搬し、反対の端面から試料外に出る。赤外光は表面での一回の反射で多重量子井戸層を 2 回通過するので、総透過回数は試料の厚さを t [m]、長さを l [m]とすると、 l/t 回となる。典型的な試料では $t = 300 \mu\text{m}$, $l = 5 \text{ mm}$ 程度であり、透過回数は 17 回程度である。

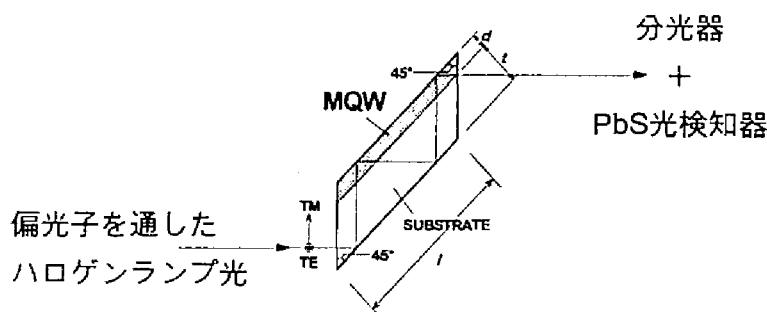


図 4.5: 45 度導波路構造

実際の評価では、ハロゲンランプ光の放射特性や分光器の分光特性等に起因する測定系自身の赤外光波長(λ)依存性を取り除く必要がある。そこで測定対象である n 型量子井戸試料を透過してくる光強度スペクトル $T(\lambda)$ を、これとほぼ同様の大きさに作製された量子井戸層を含まない半絶縁性 GaAs 基板製の参照用試料を透過してくる光強度スペクトル $T_0(\lambda)$ で割り算した。ただし λ は入射赤外光の波長である。この方法により、試料の赤外光吸収度スペクトル $A(\lambda)$ は以下の式で評価できる。

$$A(\lambda) = -\ln\left(\frac{T(\lambda)}{T_0(\lambda)}\right) \quad (4-2)$$

C 測定結果および考察

C-1 サブバンド間吸収スペクトル

前節の方法で測定した試料の赤外光吸収度スペクトルの一例を図 4.6に示す。測定対象は井戸層の In 組成(x)が 0.2、成長温度(T_g)が 520 °C、および多重量子井戸の総数が 30 個と共通であり、井戸層幅(W)のみが 9、11、13 ML と異なる 3 つの試料である。同図から分かるように、これらの試料では赤外光の吸収が観測されている。これらの吸収ピークは以下の理由からサブバンド間吸収であると同定できる。

- (a) TM 偏光の場合にのみ顕著な吸収ピークが観測されており、TE 偏光の場合には観測されていない。これは一般的なサブバンド間遷移の選択則に一致している。^{2,11)}
- (b) 吸収ピークの波長は井戸層幅の狭い試料ほど短波長側にずれており、これはサブバンド間遷移の一般的特性に一致している。^{2,11-13)}

これにより、提唱している材料系においてサブバンド間吸収が存在することが示され、井戸幅 9ML の試料で 2.2 μ m までの短波長化が達成できていることが分かった。

さらに短いサブバンド間遷移波長を示すため、より狭い井戸層幅 7 および 8 ML の試料に対して赤外光吸収スペクトルを測定した。その結果を図 4.7に示す。試料の井戸層 In 組成は 0.4、成長温度は 400°C、そして量子井戸の総数は 10 個である。これらの試料ではサブバンド間吸収が微弱であったため、TM 偏光吸収度スペクトルと TE 吸収度スペクトルの差のスペクトルに加工した結果を示した。これにより、参照試料の透過スペクトルで割り算した後も若干残存する測定系に起因する背景スペクトルの影響を取り除き、吸収ピークを明瞭に観測できた。同図から井戸層幅 7ML の試料において 1.90 μ m(650meV)のサブバンド間遷移波長が達成できていることが分かる。これは(著者の知る限り)GaAs 基板を用いた材料系において報告されている中で最も短いサブバンド間遷移波長であり、これにより半導体レーザの利用可能な 2 μ m 以下までの短波長化という目標は達成できた。

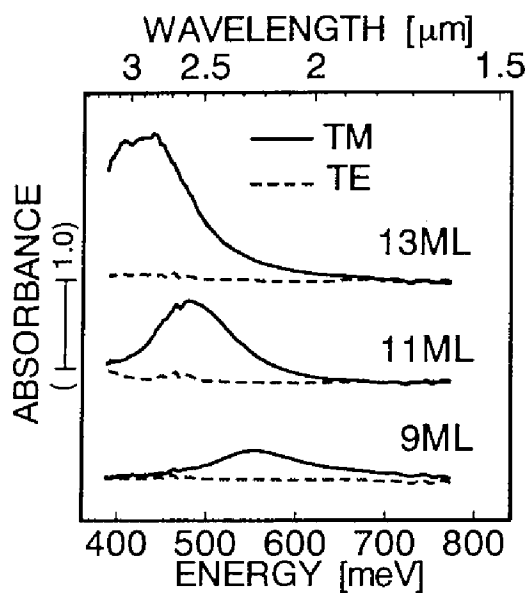


図 4.6: 井戸幅 9,11,13ML の $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{AlAs}$ 量子井戸試料の赤外光吸収スペクトル

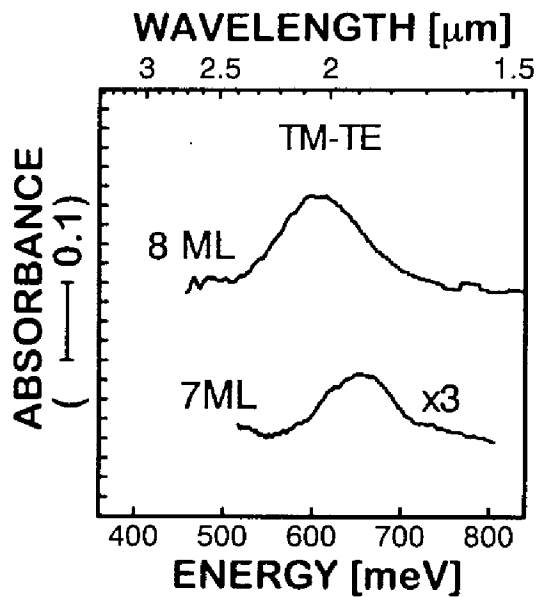


図 4.7: 井戸幅 7,8ML の $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}/\text{AlAs}$ 多重量子井戸試料の赤外光吸収スペクトル

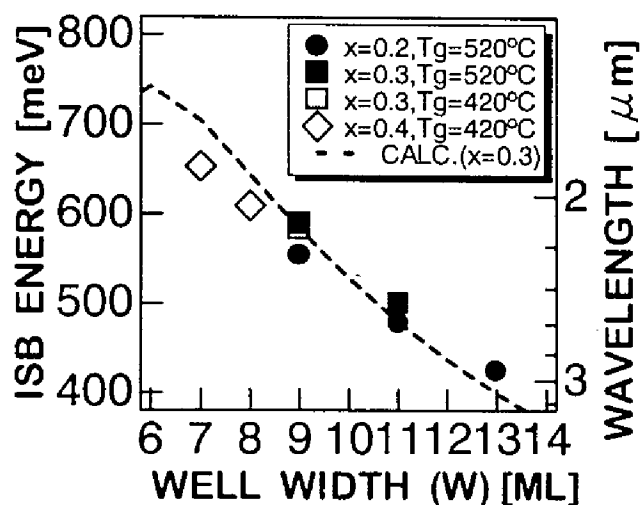


図 4.8: 井戸層幅とサブバンド間遷移エネルギーの関係

C-2 サブバンド間遷移エネルギー

他の作製試料に対しても赤外光吸収測定を行い、そのサブバンド間吸収ピーク波長から求めたサブバンド間遷移エネルギーを井戸層厚に対してプロットした結果を図 4.8 に示す。同図から井戸層幅が狭くなるほどサブバンド間遷移エネルギーが大きくなっており、その関係は 1ML で 35 meV 程度と大きいことが分かる。同図中には比較のため、サブバンド間遷移エネルギーの理論計算結果の代表例として井戸層の In 組成が 0.3 の構造で In 偏析がないとした場合の計算結果を示してある。実験結果と計算結果を比較すると、両者が比較的良好に一致していることが分かる。井戸層幅が 8ML 程度よりも狭くなる領域では計算結果が実験結果よりも若干大きくなる傾向があるが、これはこの領域では第二サブバンドのエネルギーが非常に大きいので、バンド端付近での近似である k-P 摂動法によるバンド非放物線性の取り込み方^{14,15)}が不十分になるためと考えられる。また、図 4.8 の実験結果の 520°C で作製した試料つまり In 偏析が大きい場合において、同一井戸幅の試料同士を比較すると、井戸層の In 組成の大きい試料ほどサブバンド間遷移エネルギーが大きくなっていることが分かる。この結果

は第3章で示した理論計算結果とも定性的によく一致しており、井戸層のIn組成が大きいほど、つぎに述べるIn偏析の影響を強く受けることが原因と考えられる。

つぎにIn偏析の影響を調べるため、同一の井戸幅、井戸層In組成で、成長温度が400°Cおよび500°Cと異なる二つの試料を作製し、その赤外吸収スペクトルを比較した。その結果を図4.9に示す。同図から成長温度が低くIn偏析の無い試料と比較して、成長温度が高くIn偏析が強い試料ではサブバンド間吸収ピークが30meV程度も高エネルギー側に移動していることが分かる。これは、第3章で予想したようにIn偏析が生じる場合、井戸層と障壁層の成長表面側の境界でInとAlが交換するため井戸層幅が実効的に1ML程度小さくなることに起因すると考えられる。実際、このピークのシフト量は第3章で行った計算結果と定量的にもほぼ一致している。また、上述の偏析のある場合に井戸層のIn組成が大きいほどサブバンド間エネルギーが大きくなる現象は、これを裏付ける結果といえる。なぜならばIn組成が大きいほど、上記のInとAlの交換が多く生じるので実効的井戸幅の減少も大きいと考えられるからである。

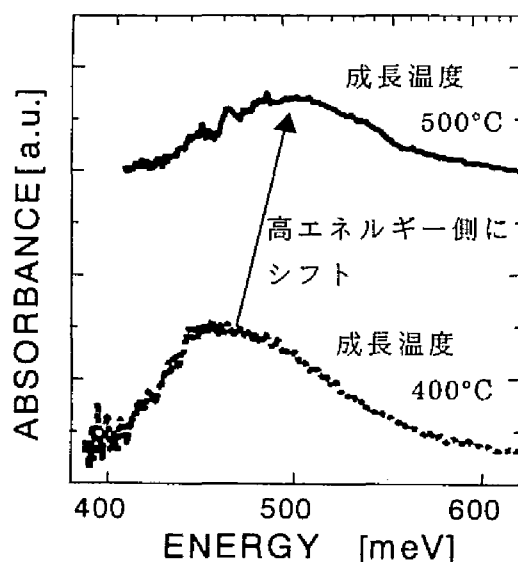


図 4.9: In 偏析とサブバンド間吸収スペクトルの関係

C-3 偏光特性

図 4.6から分かるように、本研究で用いた GaAs 基板上 InGaAs/AlAs 量子井戸のサブバンド間吸収は TM 特性をもち、TE 偏光では吸収が存在しない。これは一般的なサブバンド間吸収の偏光特性と一致しているが、一方でサブバンド間遷移の双極子モーメントをスピン(spin)とバンドミキシング(band mixing)効果も含めて詳しく計算すると TE 偏光成分も生じ得るとの報告もある。^{4,7)} これは、量子井戸の閉じ込めポテンシャルにより、伝導帯サブバンドを形成するブロッホ基底関数に価電子帯の軽い正孔バンドやスピン軌道分離バンドが混合するために双極子モーメントの井戸面内方向成分も生じ得るという考え方である。短波長化サブバンド間遷移では量子井戸ポテンシャルが大きいと、このような効果があるとする、その影響は大きいはずである。実験的には TM 偏光成分のみが吸収されているわけではあるが、このことは理論面からも確かめておく必要があると考え、理論的検討も行った。計算方法の詳細は文献5による伝導帯底および価電子帯頂上の 8 個のブロッホ関数を用いた k -P 摂動法によったが、ここでは加えて井戸層の圧縮歪による禁制帯幅およびブロッホ基底関数の変化¹⁴⁾を考慮し、また In 偏析による井戸構造の変化の影響も取り入れた詳細な計算を行った。まず、成長層方向の双極子モーメント M_{TM} と成長面内方向の双極子モーメント M_{TE} の井戸幅依存性の比較を図 4.10に示す。仮定した構造は井戸層の In 組成 0.5、障壁層厚 36ML で In の偏析はないとした。同図から M_{TM} に比べて M_{TE} は 1/100 程度と小さいことが分かる。このことから、本研究で用いた量子井戸構造ではサブバンド間吸収が TM 偏光特性を示すことが実験的にだけでなく理論的にも示された。In 偏析のある場合の M_{TE} についても計算を行ったが、その値はほとんど変わらなかった。また、同図から M_{TM} は井戸層幅が狭くなるにつれて減少し、井戸層幅 13ML から 7ML の変化で 9.4 から 6.2eÅ と約 30%の低下を示すことが分かる。双極子モーメントの大きさが単純に井戸幅に比例しないのは、サブバンドの波動関数がある程度は障壁層にもしみ出すので、波動関数が井戸幅以上に広がっているためと考えられる。

つぎに、In 偏析による M_{TM} の変化についても計算を行った。その結果を図 4.11に示す。同図から In 偏析長が 0Å から 18Å まで変化すると、双極子モーメントは 6%

程度低下することが分かる。これは In 偏析によって井戸層が非対称に変形してしまうために生じると考えられ、サブバンド間遷移確率は双極子モーメントの 2 乗に比例するので、この 6%の低下は約 11%のサブバンド間遷移確率の低下に相当することになる。よって、双極子モーメントの点から考えても、In 偏析は出来る限り抑制する必要があることが分かる。

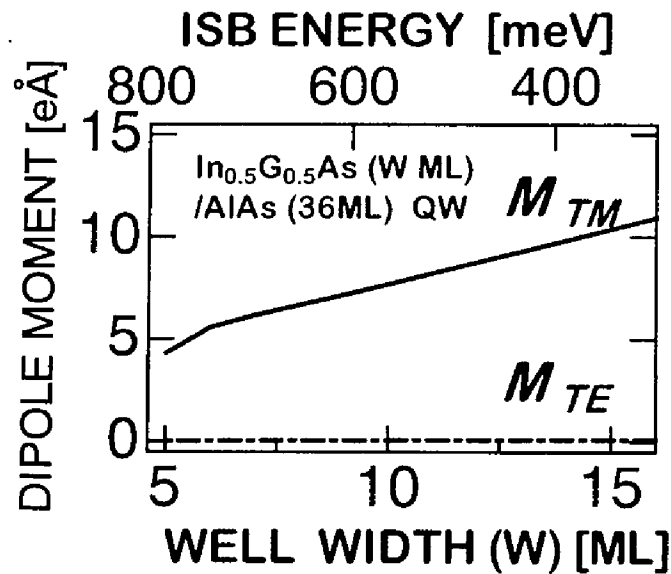


図 4.10: サブバンド間双極子モーメントの井戸幅依存性の偏光方向による違い

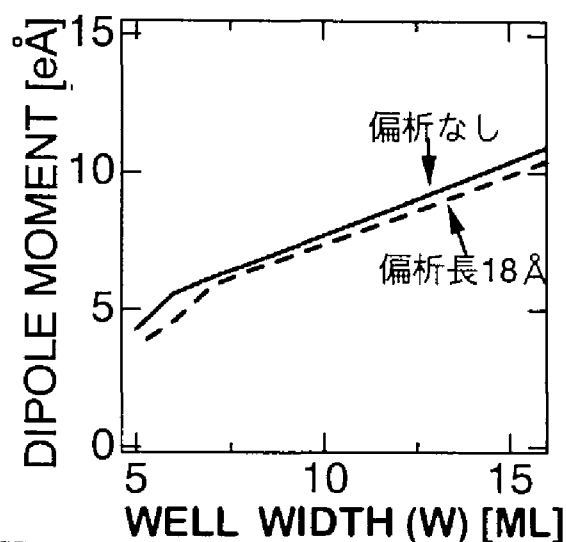


図 4.11: サブバンド間の双極子モーメントに対する In 偏析の影響

C-4 吸収半値幅

図 4.6および図 4.7から分かるように観測されたサブバンド吸収ピークの幅はどの試料を見ても 100~120meV 程度とかなり広い。超高速光変調デバイスへの応用の点から考えると、サブバンド間遷移にレーザ等の線幅の狭い光を結合させるので、¹⁶⁻¹⁸⁾ 吸収ピーク幅は狭い方が望ましい。これに対して、光検出器等の応用では検出波長域を広くするという観点から、吸収ピーク幅は広いほうが良いと考えられる。¹⁹⁾ このような応用上の観点から吸収ピーク幅が制御出来ることが望ましいが、そのためにはまず観測された広い吸収幅の起源を明らかにしておく必要がある。このような吸収半値幅についての検討は長波長サブバンド間遷移において幾つかの報告がある。^{2,11)} しながら、この短波長化サブバンド間遷移において観測された吸収半値幅は、従来の長波長サブバンド間遷移において報告されている最大でも 50 meV 程度の値と比較してかなり広いことから、別の要素が関与している可能性が高い。そこで、短波長化サブ

バンド間遷移の吸収半値幅の起源を探るため、考えられる全ての起源を定量的に評価し、観測値と比較することでその解明を試みた。以下にそれらの検討を列挙する。

- (a) サブバンド間の電子分極の位相緩和時間(τ_{phase})が有限であることから、不確定性原理により吸収ピークに量子力学的に均一な幅が生じる。^{2,8)} その大きさは $2\hbar/\tau_{\text{phase}}$ 程度であり、第 6 章で詳しく述べるように作製試料においては τ_{phase} は 0.1~0.05 ps 程度であるので、これに起因する吸収半値幅 ΔE^{phase} は 10~20 meV 程度と評価できる。
- (b) 短波長化サブバンド間遷移ではサブバンドの量子化エネルギーが大きいのでバンド非放物線性の影響^{14,20,21)}により、吸収ピークに量子力学的に不均一な広がりが生じ得る。これはバンド非放物線性の効果により、量子井戸面内の電子の運動を考えると、第 1 サブバンドよりも第 2 サブバンドの方の有効質量が大きくなるために生じる。これにより、両サブバンドは完全に平行ではなくなり、運動量の大きい電子に対するサブバンド間エネルギーは小さくなる。よって、第一サブバンドの電子密度が大きく、フェルミエネルギーが大きいほど吸収ピークは広がりを持つことになる。ここで、これに起因する吸収ピーク広がり半値幅 ΔE^{np} を第一サブバンドの電子がフェルミ分布していることを考慮して定量的に評価すると次の式で表すことが出来る。

$$\Delta E^{\text{np}} = \left(1 - \frac{m_{//1}}{m_{//2}}\right) \left\{ k_B T \cdot \ln \left(1 + 2 \exp \left(- \frac{E_f}{k_B T} \right) \right) + E_f \right\} \quad (4-3)$$

ここで、 T は温度(300K と仮定)、 E_f はフェルミエネルギー、 $m_{//1}$ および $m_{//2}$ はそれぞれ第 1,2 サブバンドにおける井戸層面内方向の運動に対する有効質量である。たとえば典型的な構造として、井戸層幅 10 ML(Si を $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 添加)、井戸層の In 組成 0.3 で In 偏析の無い量子井戸を考えると、第 3 章で述べた方法により $m_{//1}$ および $m_{//2}$ はそれぞれ $0.0765 m_0$ および $0.103 m_0$ (m_0 は真空中での電子の静止質量)と計算され、 E_f は(第 5 章で述べる方法によって) $\sim 29 \text{ meV}$ と求まる。これを上式に代入すると ΔE^{np} は約 11 meV 程度と評価できる。

- (c) 電子電子クーロン交換相互作用はサブバンド間吸収ピークの不均一な広がり

与し得る。²²⁾ これは第 1 サブバンドに存在するある波数($k_{||}$)の電子と他の第 1 サブバンドの残りすべての電子との間に働く交換エネルギーの大きさが、注目している電子の波数によって異なるために生じる。電子の波数が多いほど、交換エネルギーは小さくなるので、サブバンド間エネルギーは小さくなる。この効果による吸収ピーク広がり半値幅 ΔE^{ex} が $k_{||}=0$ の電子にとってのサブバンド間エネルギーと、 $k_{||}=k_f$ (k_f :フェルミ波数)の電子にとってのサブバンド間エネルギーの差でほぼ表現できると考えると

$$\Delta E^{\text{ex}} = \frac{e^2 k_f}{4\pi\epsilon} \left[1 - \frac{2}{\pi} \right] \quad (4-4)$$

となる。²²⁾ (ただしこの式が完全に正しくなるのは試料の温度が 0K の時であるが、300 K においてもほぼ正しいと考えられる。)ここで(b)で用いたのと同じ構造を仮定して、上式により計算すると ΔE^{ex} は ~ 13 meV 程度と評価できる。

- (d) 実際に作製した構造における井戸層幅の不均一性はサブバンド間吸収スペクトルの広がり寄与し得る。¹¹⁾ 図 4.8 から分かるように、観測されたサブバンド間エネルギーの井戸幅依存性は 35 meV/ML 程度と大きい。これは短波長化を実現するため、試料の井戸層幅が 7~13 ML 程度と非常に狭くなっているためである。これに対して一般的な MBE 法では、二次元核の形成による成長が行われるため、平均値を中心に ± 1 ML 程度層厚の異なる領域が残ることは避けられない。このような ± 1 ML 程度の井戸層厚の分布による吸収ピークの広がり ΔE^{fluc} は、図 4.8 の結果を用いると 70 meV 程度と評価できる。
- (e) 隣接井戸間の波動関数の重なりによりミニバンドが形成されると、これはサブバンド間吸収ピークの広がりにつながる。しかしながら、ここで用いた試料では第 3 章での検討によりミニバンドが生じないように、障壁層である AlAs 層厚を 36 ML と十分厚くとしている。第 3 章での計算結果からその大きさ ΔE^{mini} は 0.1 meV 以下といえる。

上で議論したこれらの起源を表 4.2 にまとめた。これらのサブバンド間吸収半値幅の

要素((a)~(e))から最終的なピーク広がり $\Delta E^{\text{Total}}(=\sum_{i=(a)-(e)}\Delta E^i)$ は 100~110 meV 程度と評

価できる。この値は観測されている 100~120 meV 程度の吸収ピーク幅とほぼ一致している。そして同表から、(d)の井戸幅の揺らぎによる不均一な広がり最も支配的な要素であることが分かる。このことから、観測された大きな吸収スペクトル幅は成長方法や量子井戸構造の設計の最適化により井戸幅揺らぎを低減することにより改善できる可能性があるといえる。その具体的方法については検討中である。(現在のところ有力な方法は見つかっていない。)また、その他の要素である(a)位相緩和、(b)バンド非放物線性、(c)電子電子交換相互作用はそれほど大きな影響を持たないことがわかる。このことからサブバンド間吸収ピーク幅は、量子井戸の構造に対する依存性をあまり持たないことが予想されるが、これは実験結果とよく一致している。(e)のミニバンド広がりの影響はここで検討した構造では全く無視できるが、障壁層幅のより狭い試料においては影響を持つことが予想される。例えば第 5 章で扱う井戸層幅 10 ML、井戸層の In 組成 0.3、障壁層幅 8 ML の試料においては 30 meV 程度のミニバンド広がりが生じることが計算によって予想できる。

表 4.2: サブバンド間吸収スペクトルの広がり起源とその寄与の大きさ

起源	種類	広がり大きさ [meV]
(a) 位相緩和	均一広がり	10 ~ 20
(b) バンド非放物線性	不均一広がり	~ 11
(c) 電子電子交換相互作用	不均一広がり	~ 13
(d) 井戸層幅ゆらぎ	不均一広がり	> 70
(e) ミニバンド広がり	不均一広がり	< 0.1

D まとめ

本章では第 3 章での理論的検討結果をもとに実際に種々の構造の量子井戸を作製し、サブバンド間吸収の短波長化を追求した。井戸層の幅 7~13 ML の n 型不純物(Si)

添加 InGaAs / AlAs 多重量子井戸試料を作製し、赤外光吸収スペクトル測定を行うことでサブバンド間遷移の特性を調べた。もっとも幅の広い、井戸幅 13 ML の試料では波長 $3.1\ \mu\text{m}$ のサブバンド間遷移が観測され、さらに井戸幅を減少させることで遷移波長が短波長化する様子が観測された。もっとも幅の狭い井戸幅 7 ML の試料においては、サブバンド間遷移波長 $1.90\ \mu\text{m}$ が観測され、半導体レーザを用いることの可能な領域までの短波長化を実現できた。これにより、サブバンド間遷移のデバイス応用をより容易にするという大きな成果を得た。

つぎに、短波長化サブバンド間遷移の偏光特性について詳細なモデルを用いて理論的に検討し、本構造を用いて短波長化した場合でも通常の長波長サブバンド間遷移と同様に TM 偏光特性のみを示すことを明らかにし、実験結果との一致を見た。また、加えて In 偏析がサブバンド間の双極子モーメントの大きさに与える影響についても計算し、In 偏析があると井戸構造が非対称に変化するため双極子モーメントが低下することを示した。その低下は In 偏析長の $0\ \text{\AA}$ から $18\ \text{\AA}$ への増加で、双極子モーメントは 6 % 程度低下し、サブバンド間遷移確率に有意な減少(12%程度)を生じさせることが分かった。

また、サブバンド間吸収スペクトルの形状について検討したところ、すべての試料において見られる $100\sim 120\ \text{meV}$ 程度の広いスペクトル幅が観測された。これは従来の長波長サブバンド間遷移のそれ(最大でも $50\ \text{meV}$ 程度)と比較して非常に大きいため、その原因を解明しておく必要があると考えた。詳しい理論的検討を行い、これが通常の成長法を用いた場合、避けることが困難な $\pm 1\ \text{ML}$ 程度の井戸幅の揺らぎに起因していることを明らかにした。

参考文献

- ¹ L. Tapfer: *Physica Scripta* T25, 45 (1989).
- ² L. C. West and E. G. Eglash: *Appl. Phys. Lett.* 46, 1156 (1985).
- ³ L. H. Peng, J. H. Smet, T. E. Broekaert, and C. G. Fostad: *Appl. Phys. Lett.* 61, 2078 (1992).
- ⁴ L. H. Peng, J. H. Smet, T. E. Broekaert, and C. G. Fostad: *Appl. Phys. Lett.* 62, 2413 (1993).
- ⁵ R. Q. Yang, J. M. Xu, and M. Sweeny: *Phys. Rev. B* 50, 7474 (1994).
- ⁶ L. H. Peng and C. G. Fostad: *J. Appl. Phys.* 77, 747 (1995).
- ⁷ M. E. Flatte, P. M. Young, L. H. Peng, and H. Ehrenreich: *Phys. Rev. B* 53, 1963 (1996).
- ⁸ E. J. Roan, and S. L. Chuan: *J. Appl. Phys.* 69, 3249 (1990).
- ⁹ M. Olszakier, E. Ehrenfreund, E. Cohen, J. Bajaj, and G. J. Sullivan: *Phys. Rev. Lett.* 62, 2997 (1989).
- ¹⁰ Y. Garini, M. Olszakier, E. Cohen, E. Ehrenfreund, A. Ron, K-K. Law, J. L. Merz, and A. C. Gossard: *Superlattice Microstructures* 7, 287 (1990).
- ¹¹ H. Asai and Y. Kawamura: *Phys. Rev. B* 43, 4748 (1991).
- ¹² H. C. Chui, E. L. Martinet, M. M. Fejer, and J. S. Harris, Jr.: *Appl. Phys. Lett.*, 64, 736 (1994).
- ¹³ Y. Hirayama, J. H. Smet, L.-H. Peng, C. G. Fostad, and E. P. Ippen: *Jpn. J. Appl. Phys.* 33, 890 (1994).
- ¹⁴ M. Sugawara, N. Okazaki, T. Fujii, and S. Yamazaki: *Phys. Rev. B* 48, 8102 (1993).
- ¹⁵ T. P. Pearsall: *Semiconductor and Semimetals Vol. 32, Strained Layer Superlattices: Physics*, edited by T. P. Pearsall, (Academic Press, Boston, San Diego, New York, London, Sydney, Tokyo, and Toronto, 1990), p. 31.
- ¹⁶ S. Noda, T. Yamashita, M. Ohya, and A. Sasaki, *IEEE J. Quantum Electron.* 29, 1640 (1993).
- ¹⁷ S. Noda, M. Ohya, Y. Muromoto, T. Asano, and A. Sasaki, *IEEE J. Quantum Electron.* 31, 1683 (1995).
- ¹⁸ T. Suzuki, T. Mituyu, K. Nishi, H. Ohyama, T. Tomimasu, S. Noda, T. Asano, and A. Sasaki: *Appl. Phys. Lett.* 69, 4136 (1996).
- ¹⁹ S. S. Li and Y. H. Wang: *Quantum Well Intersubband Transition Physics and Devices*, edited by H. C. Liu, B. F. Levine, and J. Y. Anderson, (Kluwer Academic

Publishers, Dordrecht / Boston / London, 1993), p. 29.

²⁰ A. Persson and R. M. Cohen: Phys. Rev.B 38, 5568 (1988).

²¹ U. Ekenberg: Phys. Rev. B 40, 7714 (1989).

²² M. S. V. Bandara, D. D. Coon, and Byung-sung O: Appl. Phys. Lett. 53, 1931 (1988).

第5章 短波長化サブバンド間遷移における 吸収強度の増大化

A はじめに

第4章での検討の結果得られたサブバンド間遷移の短波長化の様子を図5.1に再掲する。同図から分かるように、7MLの幅のInGaAs/AlAs量子井戸において1.9 μm までのサブバンド間遷移波長の短波長化が達成できている。ここで、つぎに重要となるのはその吸収の大きさであり、通常のデバイス応用ではサブバンド間吸収が十分強いことが要求される。同図では後述の方法で、それぞれの吸収の大きさの絶対値が比較可能になるように、試料の構造の違いを考慮して正規化し、吸収係数スペクトルとして表示してある。同図に示したサブバンド間吸収の強度に着目すると、井戸幅が狭くなり短波長化が進むほどに、吸収強度が低下している様子が見て取れる。たとえば井戸幅13MLで遷移波長3.1 μm の試料に対して、井戸幅7ML遷移波長1.9 μm の試料では、吸収スペクトルをエネルギーに沿って積分した積分吸収係数で比較すると、吸収強度が約1/10に低下しており、このように低下した吸収強度ではデバイス応用が困難であることが予想される。実際、井戸幅7MLの試料で観測された600 cm^{-1} 程度のピーク吸収は検討している光制御光変調方式への応用を考えると不十分であることが理論計算からも判明している。そこで本章では、まずこの吸収強度低下の原因を理論面から探り、その結果を用いて吸収強度の増大化を試みる。

B 吸収強度の評価方法

吸収強度についての検討を行うには各試料のサブバンド間吸収量を絶対的に比較する必要がある。そのためには(a)45度導波路構造の寸法の違い、(b)量子井戸の層厚および多重数の違い、を考慮して吸収量を正規化する必要がある。まず、(a)の点について考えると、赤外光は表面での一回の反射で多重量子井戸層を2回通過するので、試料の厚さを t [m]、長さを l [m]とすると、総透過回数は l/t 回となる。典型的な試料では $t = 300 \mu\text{m}$, $l = 5 \text{ mm}$ 程度であり、透過回数は17回程度である。次に(b)についての補正を考える。各井戸層の幅を W 、多重量子井戸の繰返し数を N とすると、赤

外光が井戸層領域を透過する総距離 L は

$$L = W \times N \times \frac{l}{t} \times \frac{\cos^2 \theta}{\sin \theta} \quad (5-1)$$

となる。ここで θ は赤外光が量子井戸層に対して入射する角度である(水平入射で 0 度、垂直入射で 90 度)。そして、上式の $1/\sin \theta$ 倍は光が井戸層に対して斜めに入射するために光路長が増加することを考慮した係数であり、 $\cos^2 \theta$ はサブバンド間遷移が TM 偏光成分に対してのみ起きることを考慮した係数である。赤外光に対する多重量子井戸層の屈折率が GaAs 基板の屈折率よりも低いので、 θ は 45 度よりも小さい値(40 度程度)になる。この L により第 4 章で述べた試料の赤外光吸収度スペクトルを割ることで、試料の吸収係数スペクトルを得ることが出来る。

$$\alpha(\lambda) = -\ln\left(\frac{T(\lambda)}{T_0(\lambda)}\right) \times \frac{1}{L} \times \frac{D}{\int_0^D \left[1 - \cos\left(\frac{4\pi\eta}{\lambda} \sin \theta \times z\right)\right] dz} \quad (5-2)$$

上式の、最後の項は量子井戸が試料の表面に非常に近い領域にあるために生じる光干渉の効果を表したものであり、 η は赤外光に対する量子井戸層の平均屈折率、 D は井戸層と障壁層の両方を含めた多重量子井戸の総膜厚である。この項は、表面での入射光と反射光の干渉²⁾から光の強度は変化しないにもかかわらず偏波方向が変化する現象を取り入れたもので、偏波依存性のあるサブバンド間遷移を評価する上では重要な項である。

以上の方法で測定された吸収スペクトルを吸収係数スペクトル $\alpha(\lambda)$ に変換することで、各試料の吸収の大きさを絶対的に比較することが可能にした。

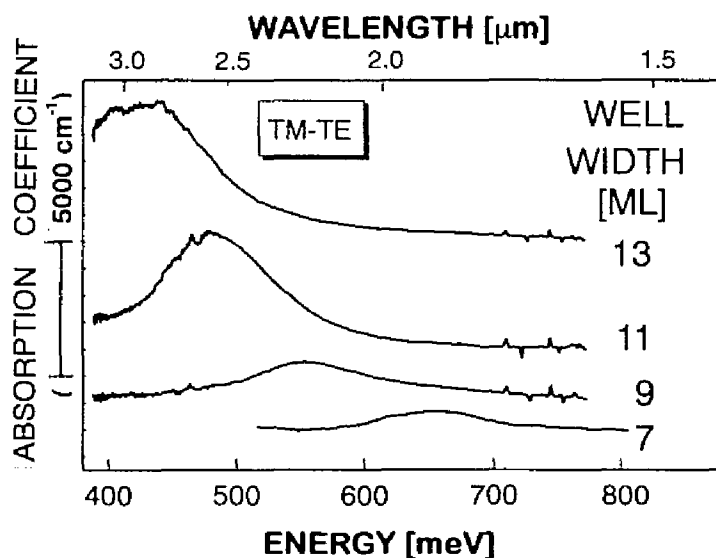


図 5.1: サブバンド間遷移に短波長化に伴う吸収スペクトルの変化。各吸収スペクトルは後述の方法で、相互に比較できるように正規化して吸収係数スペクトルに変換してある。

C 吸収強度減少の理由

C-1 積分吸収量

前述の図 5.1に示した遷移波長の短波長化に伴う急速な吸収強度の低下について理論面から検討を加え、その理由を追求するために、第 4 章で示したサブバンド間吸収スペクトルの理論式(式(4-1))を ω に沿って積分し、下記の積分吸収量の理論式を求めた。

$$\int_0^{\infty} \alpha(\omega) d\omega = \frac{\pi}{\hbar} \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon}} E_{ISB} |M_{ISB}|^2 n_1 \quad (5-3)$$

ただし、波長 $2\mu\text{m}$ 程度の短波長化サブバンド間遷移ではサブバンド間のエネルギーが 500meV 程度以上と大きいので、第 2 サブバンドに電子が熱的に励起されることはないと考え、 $n_2 = 0$ とした。実際のサブバンド間吸収スペクトルは第 4 章で述べた種々

の要因により式(4-1)の理想的な場合よりも広がっているが、積分値を求めることで吸収広がり的大小に関係なく吸収の大きさを評価できる。そこで実験的に得られた吸収係数スペクトルを積分し、それを式(5-3)の右辺で評価した。この式(5-3)から、吸収係数の積分値はサブバンド間遷移エネルギー E_{ISB} 、サブバンド間の双極子モーメント $|M_{\text{ISB}}|$ の二乗および第 1 サブバンドに存在する電子の密度 n_1 に比例することが分かる。そこで、この三つをそれぞれ定量的に検討し、観測された吸収量の低下の原因を探った。

まず E_{ISB} については、遷移波長の $3.1\mu\text{m}$ (井戸幅 13ML)から $1.9\mu\text{m}$ (井戸幅 7ML)までの短波長化によって 1.6 倍に大きくなるので、観測された吸収強度の 1/10 の低下とは反対の傾向を示しており、これは原因ではないことが分かる。つぎに、双極子モーメントについては、第 4 章の図 4.10 から分かるように井戸幅を 13 ML から 7 ML まで狭くすることで $|M_{\text{ISB}}|$ は 9.4 から $6.2\text{e}\text{\AA}$ と約 30% 程度の低下を示すことが分かる。吸収は $|M_{\text{ISB}}|^2$ に比例するので、これは約 50% の吸収量の低下に寄与することになる。しかしながら、観測された 1/10 の吸収量の低下をすべて説明するには不十分である。よって、残るのは第 1 サブバンドの電子密度が何らかの理由で急激に低下している可能性である。その機構としては、図 5.2 に示すような X 谷への電子の漏れが考えられる。つまり、AlAs は間接遷移型半導体のため AlAs 障壁層の X 谷が第一サブバンドとエネルギー的に近い位置に存在するため、電子が障壁層の X 谷にも分布する²⁾ことで n_1 が低下する可能性がある。この仮定に基づくと、井戸幅が狭いほど第 1 サブバンドエネルギーは高くなり、障壁層における電子の分布が大きくなって n_1 は低下すると考えられ、この傾向は観測結果と定性的に一致する。この仮定が定量的にも観測結果を説明できるか否かを確かめるため、InGaAs 層が井戸層となる Γ 谷のサブバンドおよび AlAs 層が井戸層となる X 谷のサブバンドの両方を考慮して、添加した電子が伝導帯中でどのように分布するかを詳しく計算した。

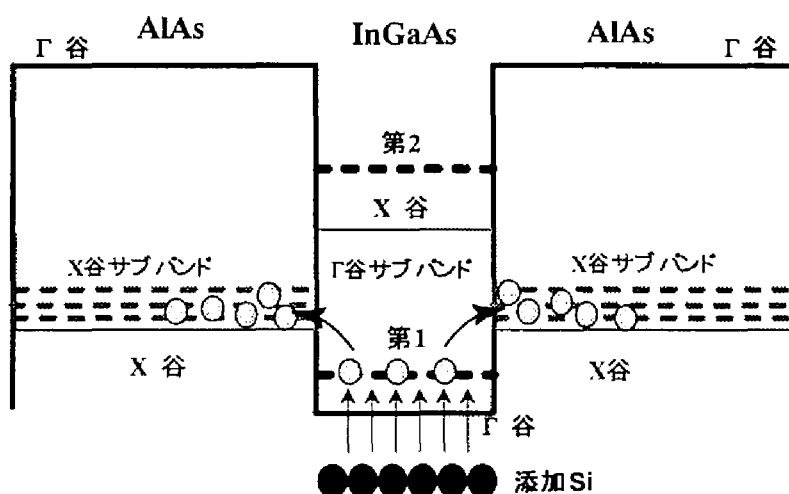


図 5.2: Γ 谷のサブバンドから X 谷のサブバンドへ電子が漏れる機構の模式図。

C-2 計算方法

このような計算で正確な電子分布を求めるためには、一般に電荷の再配置による井戸ポテンシャルの変化を考慮に入れる必要があることが知られている。^{3,4)} そこで、これを考慮するため計算は以下の手順で自己無撞着に行った。

- (A) 第3章で用いた一連の方法を Γ 谷およびX谷のサブバンドの両方に適用することで、構造内に存在するすべてのサブバンドのエネルギーと、波動関数および状態密度を求める。
- (B) フェルミディラック(Fermi-Dirac)の分布式と(A)で求めた各サブバンドのエネルギーおよび状態密度を用いて添加した電子が各サブバンドにどのような割合で分布するかを計算する。
- (C) (B)の結果と(A)で求めた波動関数から、構造内での電子の空間的な分布を求める。
- (D) (C)で得られた電子(負電荷)の空間分布と、添加した n 型不純物(正電荷)の空間分布(井戸層のみに添加)から、構造内の電荷分布を求める。
- (E) ポアソン(Poisson)の方程式を用いて構造内の電荷分布から生じるクーロンポテ

ンシャルを計算する。

(F) 当初の量子井戸ポテンシャルに加えて(E)で求めたポテンシャルを加えることで、より正確な井戸ポテンシャルを求め、(A)に戻る。

この(A)~(F)の計算を計算結果が一定値に収束するまで繰り返し行い、自己無撞着な電子分布を計算した。

ここで、(A)において X 谷サブバンドのエネルギーを計算する際に必要となる成長方向の運動に対する X 谷の有効質量 m_{lx}^* としては、 Γ 谷のサブバンドとの類推による現象論的な形で非放物線性を取り込んだ以下の式を用いた。

$$\frac{1}{m_{lxp(s)}^*(E)} = \frac{1}{m_{xl(l)}^*(0)} \cdot \frac{Eg_x}{Eg_x + E} \quad (5-4)$$

X 谷の等エネルギー面は位相空間において Γ 点から X 点に向かう方向に縦長の回転楕円体の形状をしているので、X 谷は量子井戸の対称性を考えると二種類に分類できる。上式中の下付きの s あるいは p はそれぞれ X 谷の等エネルギー面の長軸方向が成長方向

に垂直な 4 つの X 谷および量子井戸面に平行な 2 つの X 谷を区別するための表示である。そして $m_{xl}^*(0)$ および $m_{xp}^*(0)$ は X 谷の底における等エネルギー面の短軸および長軸方向の運動に対する有効質量である。また、 Eg_x は価電子帯頂上と伝導帯 X 谷底との間のエネルギー差である。

つぎに、(A)において各サブバンドの状態密度を決める際に必要となる量子井戸面内方向の運動に対する有効質量 m_{ll}^* については、以下の式を用いた。まず Γ 谷に対しては

$$\frac{1}{m_{lln}^*} = \frac{P^2}{3m_0^2} \left[\frac{3}{Eg_{hh} + E_n} + \frac{(\alpha - \sqrt{2}\beta)^2}{Eg_{lh} + E_n} + \frac{(\beta + \sqrt{2}\alpha)^2}{Eg_{so} + E_n} \right] \quad (5-5)$$

を用いた。^{6,7)} ここで、記号の意味は第 3 章で既に述べたものであるが、 Eg_{hh} は伝導帯 Γ 谷の底と重い正孔帯の頂上との間のエネルギー差であり以下の式で表される。

$$Eg_{hh} = Eg^0 + P_c^c - P_c - Q_c \quad (5-6)$$

また、X 谷に対しては有効質量の異方性が存在することを考慮して、X 谷の等エネルギー面の長軸方向が量子井戸面に平行な 4 つの Xs 谷については

$$\frac{1}{m_{//Xp}^*(E)} = \frac{1}{2} \cdot \left(\frac{1}{m_{X1}^*(0)} + \frac{1}{m_{X2}^*(0)} \right) \cdot \frac{E_{gX}}{E_{gX} + E} \quad (5-7)$$

を用い、異方性が存在しない X 谷の等エネルギー面の長軸方向が量子井戸面に垂直な 2 つの Xp 谷については、

$$\frac{1}{m_{//Xs}^*(E)} = \frac{1}{m_{X1}^*(0)} \cdot \frac{E_{gX}}{E_{gX} + E} \quad (5-8)$$

を用いた。これらの計算に用いたパラメータの値は、第 3 章の表 3.2 に既に表示している。

C-3 計算結果

第 1 サブバンドに分布する電子の密度 n_1 の井戸層幅に対する依存性の計算結果を図 5. に示す。同図から、井戸層幅の減少に従って n_1 が急激に低下している様子が見取れ、井戸幅が 13ML 程度では添加した電子の 70% 近くが第 1 サブバンドに存在しているが、井戸幅が 8ML 程度以下ではほとんどの電子は第 1 サブバンドに存在していないことが分かる。この低下は観測された吸収強度の急速な減少を十分説明し得るほど大きく、また上述のように E_{ISB} および M_{ISB} の影響は大きくないことから考えても、この n_1 の低下が吸収強度減少の決定的な要因であると結論できる。計算内容を詳しく分析すると、この n_1 の急速な低下は AlAs 層に閉じ込められた X 谷のサブバンドへの電子の漏れによって生じており、特に(A) X 谷サブバンドの状態密度が Γ 谷サブバンドの状態密度に比べて非常に大きいこと、および(B) Γ 谷第 1 サブバンドと X 谷のサブバンド第 1 サブバンドのエネルギーが同程度であること、の二つが主な要因と分かった。これは、逆に(A)および(B)の要因をうまく制御することで電子の漏れを抑制し、吸収強度を増大させることが可能であることを示している。以下では、そのような方法を理論面から立案し、実験的に検討する。

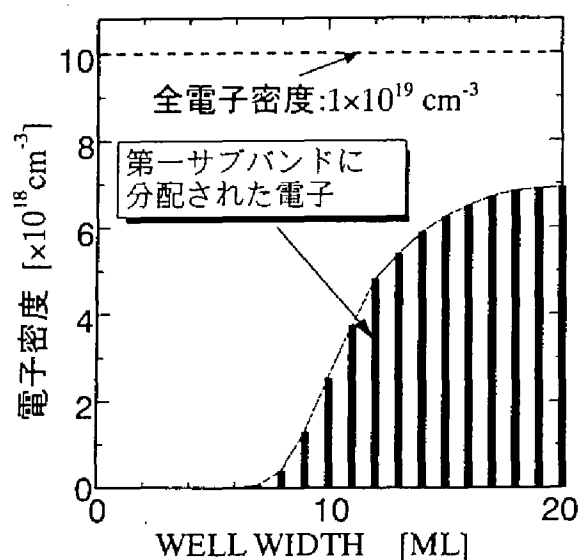


図 5.3: 井戸層幅と Γ 谷第一サブバンドに分布する電子密度との関係の計算結果。

D 吸収強度の増大化

吸収量増強の方法としては、まずこれまでの構造に小さな手を加えることから開始し、さらに量子井戸の構造を大きく変えるような方向へと検討を進めた。

D-1. 成長温度の低減

まず最初に試みた方法は、成長条件を変えて In の偏析を抑制することで(B)の要因を改善することである。この(B)は短波長化のために井戸幅を狭めたことにより Γ 谷サブバンドの量子化エネルギーが増加したことに起因している。そこで、成長温度を下げることで In の偏析を抑制し、実効的な井戸の深さを増すことで Γ 谷第 1 サブバンドのエネルギーを下げることを試みた。井戸層の幅 9ML、井戸層の In 組成 0.3 の構造を 400°C および 500°C で成長した場合の吸収スペクトルの違いを図 5.4 に示す。同図に示した吸収係数スペクトルを積分して比較すると、低温成長の試料の吸収強度は高温成長の試料の 3 倍と大きく増加していることが分かる。この結果から、吸収強度の増強を考えた場合、成長温度は In 偏析の生じない 400°C 程度まで下げることがかなり有用であることが分かった。

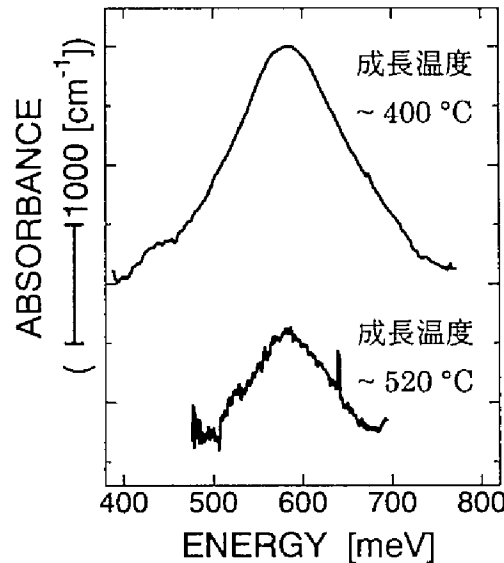


図 5.4: 成長温度の低減によるサブバンド間吸収強度の増加。

D-2 Si 添加密度の増加

次の方法として、単純に n 型不純物である Si の添加密度を増加させることを試みた。GaAs への Si の添加では、Si の添加密度が $1 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ 程度以上になると活性化率が低下し、それ以上 Si の添加密度を増しても電子密度は増加しないことが知られている。⁸⁻¹⁰⁾ これに対して InGaAs では Si の活性化エネルギーが小さいため、より多くの Si を添加しても活性化し得るとの報告がある。¹¹⁾ よって、全体の電子数を増やすことで Γ 谷第 1 サブバンドの電子数を増やすことを試みた。井戸層の In 組成 0.3、幅 10ML の構造に対して、井戸層に添加する Si の密度を $5 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ から $3 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ まで増加させた場合の吸収係数スペクトルの変化を図 5.5 に示す。同図から Si 添加密度が $5 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ から $1 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ へと増加した場合には、吸収量は二倍程度に増加していることが分かる。これに対して、添加密度が $1 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ よりも大きい領域では、添加密度を増しても吸収量はあまり増加していないことが分かる。ここで、式(5-3)を用いて積分吸収量から Γ 谷第 1 サブバンドの電子密度を求め、添加した Si の密度に対して表示したものが図 5.である。また同図中には比較のため、添加した Si が 100%活性化

したと仮定した場合の Γ 谷第 1 サブバンド電子密度の理論計算値(C-2 の方法による)を示した。同図から Si 添加密度が $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 程度までは実験結果と計算結果はほぼ等しくなっており、添加した Si のほとんどすべてが活性化していることが分かる。しかしながら添加密度が $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ を超えた場合、実験結果は計算結果よりも低い値となっており、活性化率が低下している。Si 添加密度が $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ の場合に、実際に活性化した Si は $1.1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 程度であり、添加密度が $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ の場合に活性化したのは $1.2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 程度である。この結果から、単純に Si の密度を増加させる方法では電子密度を増やすことは困難であることが分かった。

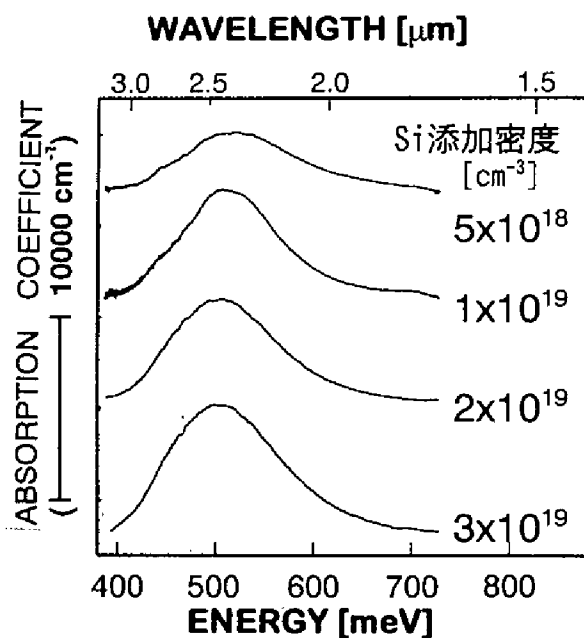


図 5.5: Si 添加密度の違いによるサブバンド間吸収スペクトルの変化。

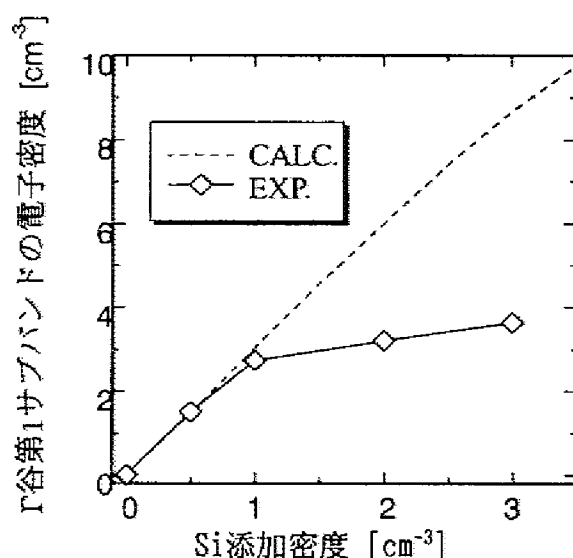


図 5.6: 吸収スペクトルから求めた Γ 谷第一サブバンド電子密度の Si 添加密度依存性。(破線は添加 Si が 100%活性化した場合の理論計算値)

D-3 井戸構造の再設計

さらに吸収強度を増強する方法を探るため、前述の(A)および(B)の要因を理論面から詳しく分析し、これらの要因を抑制することが出来るように、量子井戸の構造を根本的に設計し直すことを試みた。上述の計算で得られた各サブバンドのエネルギーおよび状態密度を表 5.1に示す。ここでは井戸層の In 組成が 0.3、幅が 10ML、障壁層の幅が 36ML の構造で、In の偏析はないと仮定した。この構造で添加した電子のうち 14%のみが第一サブバンドに残っている。この例を詳しく分析すると、前述の要因(A)(X 谷サブバンドの大きな状態密度)は以下の三つに起因していることが分かる。

(A-1) X 谷が多重に縮退していること (Xs 谷は 4 重、Xp 谷は 2 重)。

(A-2) X 谷の面内有効質量つまり状態密度有効質量が大きいため、一つ一つのサブバンドの状態密度が Γ 谷に比べて 3(Xp 谷)あるいは 7(Xs 谷)倍も大きいこと。

(A-3) X 谷の成長方向有効質量も大きく ($m_{\text{Lxp}} = 0.2 m_0$, $m_{\text{Lxs}} = 1.6 m_0$)、また AlAs 層幅が 36ML と 7~13ML の InGaAs 層幅と比較して広いため、X 谷の井戸の底付近にサブバンドが形成されること(これは前述の要因(B)の一部でもある)。またそのエネルギー間隔が 10meV 程度と狭く、その数が Xp 谷では 9 個、Xs 谷で 4 個と多いため、X 谷の第 1 サブバンドだけでなく高次のサブバンドまで電子が配分され得ること。

これらの要因をすべて考慮すると、X 谷のサブバンドの状態密度は Γ 谷のそれに比べて(4 重縮退 \times 状態密度 3 倍+2 重縮退 \times 状態密度 7 倍) \times サブバンド数 2~3 = 50~80 と 50 倍以上と大きく、これが原因で添加した電子の多数が X 谷に漏れ出ていることが分かる。上記の要因のうち(A-1)および(A-2)は AlAs という短波長化に不可欠な障壁層材料の特性に起因しており、手を加えることは不可能である。しかし、(A-3)については障壁層幅を狭くすることにより、サブバンドの量子化エネルギーを増加させ、 Γ 谷第 1 サブバンドと X 谷第 1 サブバンドのエネルギー差を拡大し、また電子が配分され得る X 他にサブバンドの数を減少させることが可能であり、要因(A)と(B)を同時に抑制できると考えられる。また、前述のように井戸の深さが不十分であることから(B)の要因(Γ 谷第 1 サブバンドと X 谷第 1 サブバンドのエネルギーが同程度であること)は発生しており、この点については井戸層の In 組成を増大させることで抑制可能と考えられる。以上の検討から、量子井戸の構造を(1)AlAs 障壁層の幅を狭くする、(2)井戸層の In 組成を増やす、の二つの点から設計し直し、実験的に吸収強度の増強を試みた。

表 5.1: Γ 谷および X 谷サブバンドのエネルギーと状態密度

谷の種類	番号	AlAs の Γ 谷底からのエネルギー [meV]	状態密度 有効質量 [m_0]
Γ 谷	1	-937.2	0.0777
	2	-390.2	0.104
Xp 谷 (2 重縮退)	1	-874.9	0.242
	2	-868.4	0.243
	3	-857.7	0.245
	4	-842.6	0.247
	5	-823.1	0.251
	6	-799.5	0.257
	7	-772.6	0.270
	8	-747.4	0.315
	9	-734.6	0.315
Xs 谷 (4 重縮退)	1	-867.9	0.628
	2	-841.3	0.647
	3	-799.6	0.680
	4	-748.9	0.720

D-3-1 障壁層幅を狭くする

まず障壁層幅を狭くする方法について検討した。用いた試料は井戸層の In 組成が 0.3、井戸層幅 10ML の 30 周期多重量子井戸構造で、井戸層のみに Si を $2 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ 添加してある(D-2 から分かるように実効的には $1.1 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ 程度の電子が活性化)。以上の構造パラメータは同一とし、障壁層幅のみを 36、16、8ML と変化させた 3 つの試料を用意した。D-1 の結果から成長温度はすべての試料で 400°C とし、In 偏析が抑えられて吸収強度が大きくなる条件を用いた。図 5.7 にこれらの試料から得られたサブバンド間吸収スペクトルの障壁層幅依存性を示す。同図から、障壁層幅が狭くなるに従って吸収強度が増加する様子が見て取れる。つぎに図 5.7 の吸収スペクトルを積分して得られた積分吸収係数を、上述の電子分布の計算結果を式(5-3)に代入して得られた積分吸収係数の理論値と合わせて図 5.8 に示す。同図から障壁層幅 8ML の試料の積分吸収係数は障壁層幅 36ML の試料の 2 倍以上に増加しており、X 谷への電子の漏れがこの方法で効果的に抑制できていることが示された。また、この実験結果は理論計算結果とも比較的よく一致している。ここで、障壁層幅 8ML の構造に対する

電子分布の計算結果の詳細を表 5.2に示す。同表と障壁層幅 36ML の構造に対する計算結果である表 5.1を比較すると、障壁層幅の 36ML から 8ML への減少により以下の変化が生じていることが分かる。

- (a) X 谷第 1 サブバンドのエネルギーと Γ 谷第 1 サブバンドのエネルギー差が 62meV(X_p 谷)あるいは 69meV(X_s 谷)から 92meV(X_p 谷)あるいは 123meV(X_s 谷)へと増加している。
- (b) X_p 谷サブバンドの数が 9 個から 3 個に減少し、そのエネルギー間隔も 10meV 程度から 60meV 程度に増加している。また X_s 谷サブバンドの数は 4 個から 2 個に減少し、そのエネルギー間隔も 20~30meV 程度から 100meV 程度に増加している。

このことにより、障壁層幅の低減によって確かに前述の(A-3)の要因が抑制されており、予想通りの要因で吸収強度が増加していることが分かる。また理論計算結果を用いて外挿すると、さらに障壁層幅を狭くすることで、より一層の吸収強度の増強が可能であることが予想される。しかしながら障壁層幅がそのように狭くなると、隣接井戸間の波動関数の重なりが大きくなり、ミニバンド幅の広がりが無視できなくなると考えられる。実際、図 5.7から障壁層幅 8ML の試料の赤外光吸収スペクトルは障壁層幅 36 および 16ML の試料のそれ(~110 meV)に比べて若干幅が広く(~140 meV)、低エネルギー側にシフトしていることが見て取れ、これは既に 8ML の障壁層幅でミニバンド幅の影響が生じていることを示している。また、第 3 章で述べたミニバンド幅の計算をこの構造に対して行くと、障壁層幅 16ML ではミニバンド広がりはまだ 1meV 以下であるが、障壁層幅 8ML の場合には 36meV(第 2 サブバンド)のミニバンド広がりが生じているとの結果が得られ、これは実験結果を裏付ける結果といえる。またこの計算を障壁層幅 6ML の構造に対して行くと、第 2 サブバンドのミニバンド広がり 80meV 程度との結果が得られた。よって、障壁層幅が 8ML よりも小さい構造ではサブバンド間吸収スペクトル幅が大きく増加するため、その利用は困難になると考えられ、今回検討した 8ML 程度が障壁層幅低減の限度といえる。

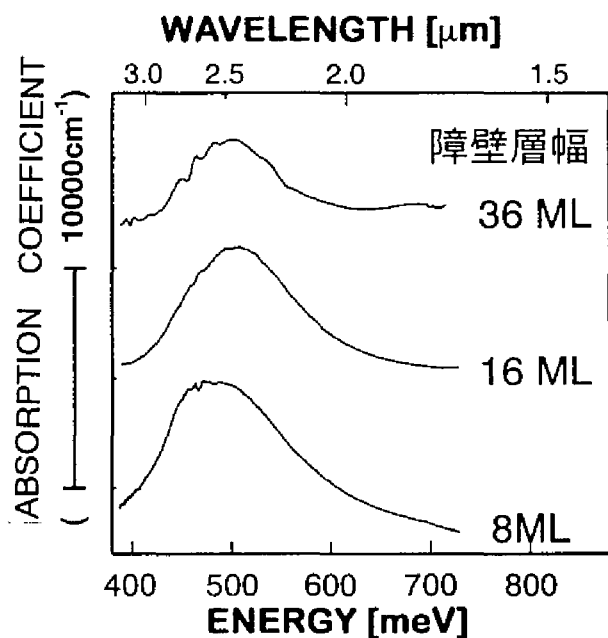


図 5.7: 障壁層幅を狭くして行った際のサブバンド間吸収スペクトルの変化。

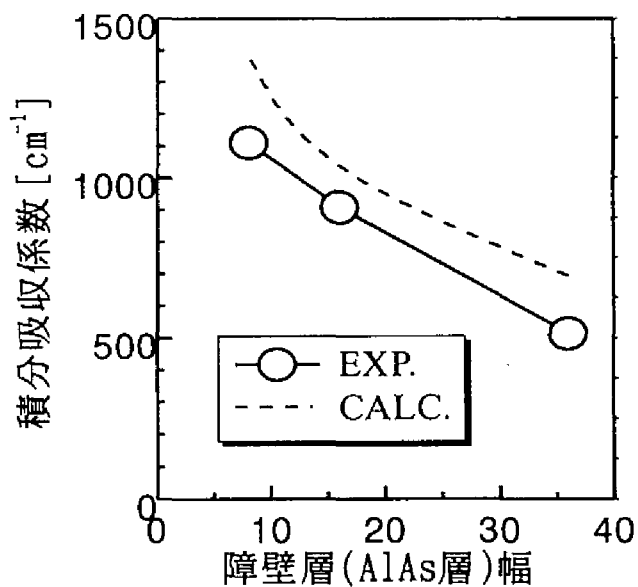


図 5.8: 図 5.7から実験的に求めた積分吸収係数の障壁層幅依存性とその理論計算値との比較。

表 5.2: Γ およびX谷サブバンドのエネルギーと状態密度(障壁層幅 8ML)

谷の種類	番号	AlAs の Γ 谷底からのエネルギー[meV]	状態密度有効質量 [m ₀]
Γ 谷	1	-945.0	0.0776
	2	-418.0	0.103
Xp 谷 (2 重縮退)	1	-853.1	0.250
	2	-784.3	0.288
	3	-739.0	0.363
Xs 谷 (4 重縮退)	1	-821.6	0.706
	2	-717.7	0.824

D-3-2 井戸層の In 組成を増やす

最後に、井戸層の In 組成を増やして直接的に Γ 谷の第一サブバンドのエネルギーを低下させ、サブバンド間遷移に寄与する電子の量を増加させる試みを行った。用いた試料はこれまでの検討と同じく井戸層幅 10ML とし、D-1 の結果から最も吸収量を大きく出来るように障壁層幅は 8ML とした。量子井戸の総数もこれまでと同様 30 個とし、成長温度は吸収量を大きくするため In 偏析の無い 400°C を用いた。これらの条件は不変とし、井戸層の In 組成のみが 0.3、0.35、0.4 と異なる三つの試料を用意した。図 5. にこれらの試料に対する赤外光吸収測定の結果を示す。同図から井戸層の In 組成の増加に従って、サブバンド間吸収が強くなっている様子が分かる。特に井戸層の In 組成が 0.4 の試料においては、ピーク値で 14000cm⁻¹ もの吸収係数が観測されており、これはデバイス応用に十分な大きさといえる。また、図 5.10 には図 5. から求めた積分吸収係数の実験値の井戸層 In 組成依存性を、その理論値と合わせて示す。同図から In 組成 0.3 の試料に対して 0.4 の試料では積分吸収係数が 2 倍以上に増加していることが分かる。この結果は、理論値とも比較的良好に一致しており、表 5.3 に示す In 組成 0.4 の試料に対するバンド計算結果の詳細を表 5.2 と比較することで分かるように、X 谷サブバンドのエネルギーはほとんど変化していないが、 Γ 谷サブバンドのエネルギーは In 組成の増加により 50meV 程度の低下を示している。これにより、添加した電子の X サブバンドへの漏れが抑制され、予想のとおり吸収強度を増加させることが出来たものといえる。

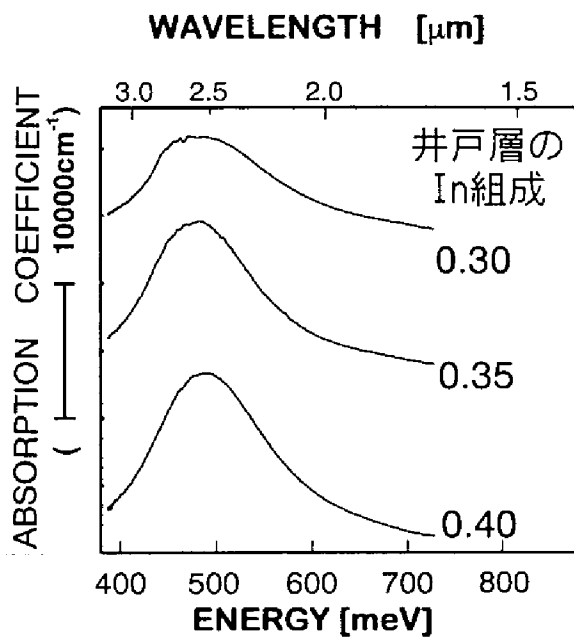


図 5.9: 井戸層の In 組成を増やした場合のサブバンド間吸収スペクトルの変化。

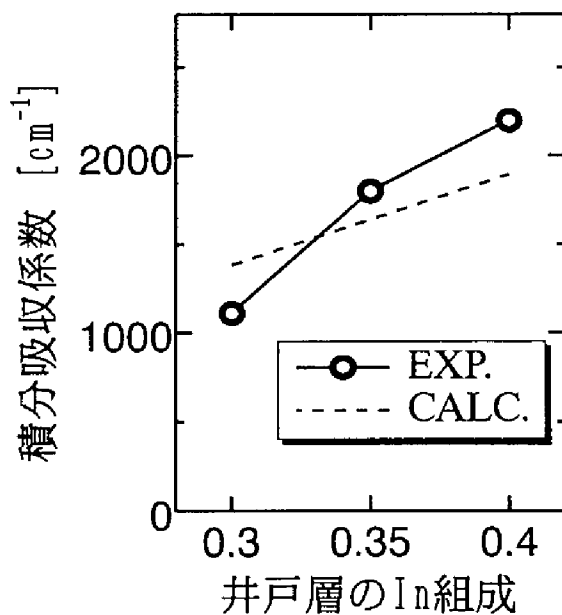


図 5.10: 図 5.から実験的に求めた積分吸収量の井戸層 In 組成依存性と理論計算値の比較。

表 5.3: Γ およびX谷サブバンドのエネルギーと状態密度(障壁層幅 8ML)

谷の種類	番号	ALAs の Γ 谷底からのエネルギー [meV]	状態密度有効質量 [m ₀]
Γ 谷	1	-988.637961	0.076238
	2	-463.512520	0.102254
Xp 谷 (2 重縮退)	1	-853.727704	0.257177
	2	-788.253494	0.300438
	3	-750.839660	0.361859
Xs 谷 (4 重縮退)	1	-825.699143	0.716146
	2	-729.810286	0.825056

また、図 5.10の結果の外装から、さらに In 組成を増やすことでより大きな吸収強度を得ることも可能と予想できる。そこで本研究では、井戸層の In 組成が 0.5 と大きい試料の作製の作製を試みた。しかしながら、成長中の RHHED パターンの観測から、7ML 目の InGaAs 層の積層後に成長モードが 2 次元から 3 次元へと変化し、所望の量子井戸構造が作製できないことが判明した。一般に、In 組成の大きい InGaAs 層の積層では歪エネルギーが大きくなるため、このような現象が生じることが知られており、^{12,13)} 幅の広い井戸層で In 組成を増加させることは困難といえる。しかしながら、上述のように井戸層幅が 6ML 以下の構造を作成する場合にはこの問題は生じないので、今後、より短波長なサブバンド間遷移波長の達成を狙う場合にはこの方法を利用できるものと考えられる。

E まとめ

本章では第 4 章で達成された短波長化サブバンド間遷移において、デバイス応用には十分な光吸収が必要であるとの観点から吸収強度についての検討を行った。まず、サブバンド間吸収の積分量の試料構造依存性を調べたところ、井戸幅の減少に伴って吸収強度が急速に減少することが分かり、これはサブバンド間遷移波長を短波長化するほどデバイス応用が困難となることを意味しているため、これを抑制することを次の研究課題とした。詳しい理論的検討を行ったところ、井戸幅の減少に伴って(a)サブ

バンド間遷移の双極子モーメントが減少することに加えて、(b)井戸層の第一サブバンドに存在して吸収に寄与する予定の電子の大部分が AlAs 障壁層の X 端に漏出することにより吸収量の減少が生じることが分かった。(a) の双極子モーメントの低下は理論的に回避不能であり、またその寄与も(b)の半分以下であった。これに対して、(b)は量子井戸の構造や作製条件によって制御可能と考えられた。そこで、AlAs 障壁層の X 谷のサブバンドへの電子漏出が、(A)X 谷サブバンドの大きな状態密度、および(B)X 谷第 1 サブバンドと Γ 谷第 1 サブバンドのエネルギー差が小さいこと、に起因していることを突き止め、これを抑制するための種々の方法を Γ 谷および X 谷サブバンドの準位計算結果の詳細な分析をもとに立案して実験を行った。(1)400°C 程度の低温成長による In 偏析の抑制、(2)Si 添加密度の増加、(3)AlAs 障壁層幅の低減、および(4)井戸層の In 組成の増加について実験を行い、理論計算結果と比較しつつ検討した。その結果(1)、(3)および(4)により電子の障壁層への漏出が抑制する手法が有効であることが判明し、吸収強度を最適化前の 12 倍にまで増加させることに成功した。最も最適化された井戸層の In 組成が 0.4、障壁層の幅 8ML の構造ではピーク値で 14000cm^{-1} もの大きな吸収係数が観測され、デバイス応用に十分な特性を得ることが出来た。

参考文献

- ¹ 鶴田匡夫: 応用物理工学選書 1 応用光学-I(培風館、東京、1990)
- ² J. Bandet, G. Bacquet, F. Fabre, J. Frandon, and R. Taouint: J. of Appl. Phys. **69**, 2532 (1991).
- ³ T. Ando and S. Mori: J. of Phys. Soc. Jpn. **47**, 1518 (1979).
- ⁴ E. J. Roan, and S. L. Chuan: J. Appl. Phys. **69**, 3249 (1990).
- ⁶ M. Sugawara, N. Okazaki, T. Fujii, and S. Yamazaki: Phys. Rev. B **48**, 8102 (1993).
- ⁷ T. P. Pearsall: *Semiconductor and Semimetals Vol. 32, Strained Layer Superlattices: Physics*, (Academic Press, Boston, San Diego, New York, London, Sydney, Tokyo, and Toronto, 1990), p. 31.
- ⁸ Y. G. Chai and R. Chow: Appl. Phys. Lett. **39**, 800 (1981).
- ⁹ R. Fisher, C. G. Hopkins, C. A. Evans Jr., T. J. Drummond, W. G. Lyons, J. Klem, C. Colvard, and H. Morkoc: in *Proceedings of International Symposium on GaAs and Related Compounds 1983*, p. 157.
- ¹⁰ M. Ogawa: in *Proceedings of International Symposium on GaAs and Related Compounds 1985*, p. 103.
- ¹¹ T. Fujii, T. Inata, K. Ishii, and S. Hiyamizu: Electron. Letters **22**, 191 (1986).
- ¹² M. Tabuchi, S. Noda, and A. Sasaki, in *Science and Technology of Mesoscopic Structures*, edited by S. Namba, C. Hamaguchi, and T. Ando (Springer, Tokyo, 1992), p. 379, paper presented at 1st International Symposium on Science and Technology of Mesoscopic Structures (Nov. 6-8, 1991, Nara, Japan) p. 18.
- ¹³ P. R. Berger, K. Chang, P. K. Bhattacharya, and J. Singh: J. Vac. Sci. Technol. B **5**, 1162 (1987).

第6章 短波長化サブバンド間遷移における 電子励起の超高速緩和特性

A はじめに

本研究で取り扱う光制御光変調方式ではサブバンド間吸収に伴って第 1 サブバンドから第 2 サブバンドに励起された電子が非常に速い時間で元の状態に緩和できることを利用して超高速の変調の実現を試みている。本章では、この緩和過程について実験および理論の両面から詳しく検討する。

まず、図 6.1 に現在考えられているサブバンド間の緩和過程を模式的に示す。サブバンド間光の照射に伴って生じたサブバンド間の電子分極は、縦型音響(LA)フォノン散乱、縦型光学(LO)フォノン散乱、電子電子散乱やイオン化不純物散乱等により壊されて位相緩和が生じ、その結果として光の吸収と電子の励起が生じる。これに要する時間はサブピコ秒以下といわれている。¹⁾さらに、第 2 サブバンドに励起された電子は上記の各種散乱を通じてサブピコ秒程度の時間でサブバンドの底までバンド内緩和する。²⁾つぎに LO フォノンを放出することにより、ピコ秒程度の時間をかけて電子は第 1 サブバンドへとサブバンド間緩和する。³⁻⁵⁾第 1 サブバンドへの緩和過程としては LA フォノンの放出⁶⁾や光子の自然放出による過程も考えられるが、これらは 100ps 程度以上の時間を要するため LO フォノン放出過程に比べて無視できる。第 1 サブバンドに緩和した電子は、さらに LA フォノン散乱、LO フォノン散乱、電子電子散乱やイオン化不純物散乱等により、第 1 サブバンドの底までサブピコ秒程度の時間で緩和する。実際には位相緩和、バンド内緩和およびサブバンド間緩和は同時に生じており、厳密にこのような順序で緩和が生じるわけではないが、それぞれの速度がかなり異なるため、このようなモデルである程度まで説明することが可能である。

ここで、提唱している変調の速度を決定するのは励起された電子が完全にもとの状態にまで緩和するのに要する時間、つまり上のサイクルを一回りするのに要する時間であり、これは一般にエネルギー緩和時間と呼ばれる。このエネルギー緩和時間は従来の長波長域(5~10 μm)のサブバンド間遷移ではすでに測定されており、1~10 ピコ秒程度の値が得られている。⁷⁻¹¹⁾しかしながら、我々が現在進めているような短波長

化されたサブバンド間遷移においては、これまで直接的に緩和時間を測定した報告はない。このサブバンド間のエネルギー緩和時間を規定しているのは、上のサイクルの中で最も遅いサブバンド間の緩和に要する時間であり、これは LO フォノン散乱時間由決まる。量子井戸に閉じ込められた LO フォノンと電子の結合の理論的検討によると、サブバンド間の緩和による LO フォノン放出時間はサブバンド間エネルギーを E_{SB} とすると $1/E_{SB}^{1/2}$ に比例するとの報告があり、³⁾ 短波長化サブバンド間遷移ではエネルギー緩和時間が長波長サブバンド間遷移と比較して遅くなっている可能性がある。また、短波長化サブバンド間遷移では第 2 サブバンドのエネルギーが井戸層材料や障壁層材料の X 点や L 点等のバンド極小点よりも大きいため、緩和の過程が上のモデルで示したような単純なものではなく、これらの極小点付近の状態を経由するような複雑なより遅い過程が存在する可能性もある。^{13,14)} よって、短波長化サブバンド間遷移を光制御光変調を含む超高速のデバイスへと応用するには、まずこのエネルギー緩和を調べておくことが非常に重要である。本章では、まず強励起に伴うサブバンド間吸収の飽和の時間的過渡特性をポンプ&プローブ法により測定することで、エネルギー緩和時間を直接的に調べた結果について述べる。

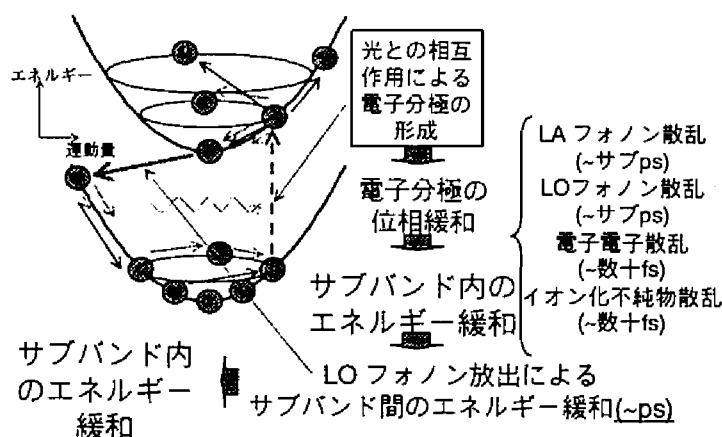


図 6.1: サブバンド間の電子励起が緩和する過程の模式図

また、上のモデルで示した最初の過程である電子分極の位相緩和に要する時間は電子

系と光とが結合している平均的な時間であり、これが長いほど光吸収スペクトルの半値幅は狭くなり、また光非線形効果が大きくなる。位相緩和時間は提唱している光—光変調の効率に関わる重要なパラメータであるだけでなく、サブバンド間遷移の光非線形効果の一般的応用から見ても検討が必要なパラメータである。ここで、本研究で用いた量子井戸構造では $1 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ 程度と多数の n 型不純物を井戸層に添加して電子を供給しており、位相緩和時間はイオン化不純物散乱や電子電子散乱の影響を強く受けると予想される。そこで、不純物の添加密度と位相緩和時間との関係についても実験および理論の両面から検討を行った。

以下では、まず B 節で短波長化サブバンド間遷移のエネルギー緩和時間について述べ、つぎに C 節において位相緩和時間について述べる。

B エネルギー緩和時間

まずサブバンド間遷移を用いたデバイスの究極的な応答時間の限界をきめるエネルギー緩和時間の検討について述べる。

B-1 ポンプ&プローブ法の原理

サブバンド間のエネルギー緩和時間はピコ秒程度と非常に高速であると予想されるため、その測定にはピコ秒以下の時間分解能をもつ手法が必要となる。そのような要求を満たす測定方法の一つとして、一般にポンプ&プローブ法と呼ばれる測定方法が幅広く利用されている。¹⁶⁾ この方法は以下で説明するように時間的に非常に短い光パルスがあれば、光検出系が遅くてもパルス幅程度の高い時間分解能が得られるという特長をもつ。

図 6.2 にポンプ&プローブ法を用いてサブバンド間遷移のエネルギー緩和時間を測定する方法を模式的に示す。まず、測定しようとする現象の時間変化よりも非常に時間的な幅の狭い光パルスを用意し、これをビームスプリッター (beam splitter) で 100:1 程度の強度比で分割し、時間的なタイミングのそろったポンプ光(強)およびプローブ光(弱)を準備する。そして、それぞれの光が試料に到達するまでの光路長を機械的に伸縮制御することで、ポンプ光およびプローブ光が試料に到達するタイミング

を制御する。まず、ポンプ光の後にプローブ光が試料に到達する場合を想定する。この場合、図 6.2-2 に示すように強いポンプ光パルスが試料に照射されることによりサブバンド間の電子の励起が生じ、第 1 サブバンドの電子密度が減少し、第 2 サブバンドの電子密度が増加する。この状態ではサブバンド間吸収が飽和しており、サブバンド間光に対する透過率が大きくなっている。その後図 6.2-4 に示すように、ある時間差でプローブ光パルスは試料に到達し、試料を透過する際にサブバンド間吸収を受ける。その時点では、第 2 サブバンドの電子は第 1 サブバンドにある程度緩和しており、それを反映して試料のサブバンド間光に対する透過率はポンプ光パルス照射の瞬間よりも小さくなっている。ポンプ光パルス照射からプローブ光パルス照射までの時間差が短いほど透過率は大きく、時間が長いほど透過率は小さくなり、最終的にはサブバンド間の電子励起が存在せず、吸収飽和がまったく無いときの小さな透過率に近づく。また、ポンプ光より先にプローブ光を照射した場合には、やはりサブバンド間の電子励起が無いので透過率は小さくなる。よって、ポンプ光とプローブ光の照射時間差を変化させつつ、試料を透過してくるプローブ光の強度を光検出器を用いて測定することにより、サブバンド間の電子励起の緩和過程を詳しく調べることが出来る。第 4 章の式(4-1)で示したように、サブバンド間の吸収係数は第 1、第 2 サブバンドの電子密度の差 $n_1 - n_2$ に比例するので、試料のサブバンド間光に対する吸収度の変化が直接的に電子密度差の変化に比例することになる。ただし、この方法ではプローブ光として、サブバンド間の電子励起状態をほとんど変化させないほど弱いものを用いることが重要である。

この測定方法では時間分解能は光検出器の時間応答特性には依存しない。なぜなら、測定原理から考えて光検出器はプローブ光の全体的な強度を検出する能力があれば十分であり、パルス波形を直接観測できる能力は必要ないためである。¹⁶⁾むしろ、時間分解能は(a)ポンプ光とプローブ光の照射時間差の制御性、および(b)ポンプ光およびプローブ光パルスの幅、によって決定される。まず、(a)については光学的遅延路の長さを機械的に変える事でかなり精密に制御できる。光の速度から計算すると、例えば両者の時間差を 100 フェムト秒変化させるには 30 μm の光学的遅延路の変化を与え

れば良い。一般的なステッピングモータ(steping motor)等の機械的制御系を用いれば $1\mu\text{m}$ 程度の精度で遅延路の変化を与えることが可能であり、照射時間差の制御は 3 フェムト秒程度という十分な精度で可能である。よって、この測定方法で時間分解能を決定するのは(b)の用いる光パルスの時間幅であり、短い光パルスを用いるほど高い時間分解能を得ることができる。後述のように、本研究で用いた光パルスは幅 130fs 程度以下の短いものであり、本測定では 100fs 程度の高い時間分解能を達成できた。

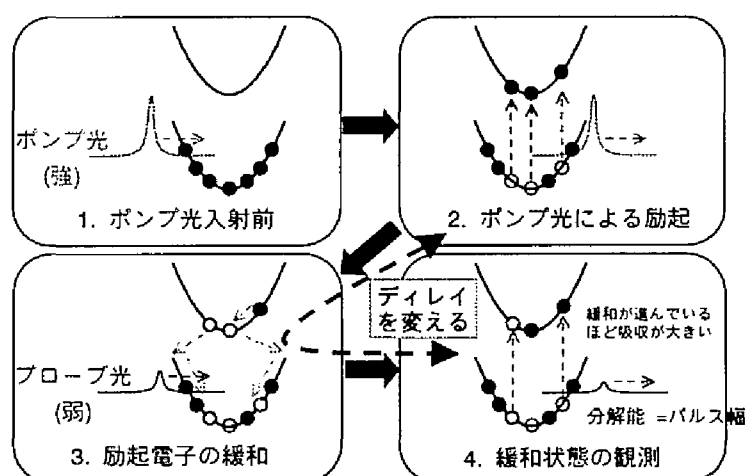


図 6.2: ポンプ&プローブ法によるサブバンド間吸収飽和の過渡特性の測定原理

B-2 測定系

以下に、実際に用いた系の構成およびその特色について述べる。

光源

本測定では測定光源として OPA(Optical Parametric Amplifier)システムと呼ばれる光非線形効果による光子の分割を利用した装置を用いた。この装置は波長領域 $1.6\sim 3.0\mu\text{m}$ で幅 130fs 以下の極短光パルスを発生可能な仕様をもち、短波長化サブバンド間遷移の緩和時間の測定に適した性能をもっている。その概要を図 6.3に模式的に示す。まずアルゴンイオン(Ar^{+})レーザ励起のチタンサファイア・レーザによって生成した波長 800nm、幅 150fs 程度光パルスをチタンサファイア結晶を用いた再生増幅

器によって増幅する。その結果、1 パルスあたりのエネルギーが 1mJ 程度、幅が 130fs 以下、そして繰り返しが 1kHz のパルス列が生成される。これは 1mm²に集光するだけでピーク強度が 1TW/cm²となるほど非常に強い光パルスであり、光非線形効果を容易に起こすことが出来る。この光パルスを β -BaIum Borate(BBO)結晶に入射すると光パラメトリック増幅と呼ばれる光非線形効果が生じ、入射光は二つの光子に分割され、一般にシグナル(signal)光とアイドラー(Idler)光と呼ばれる二種類の光が生成される。本装置ではシグナル光の波長領域は 1.1~1.6 μ m でアイドラー光の波長領域は 1.6~3.0 μ m であり、1 パルスあたり 30 μ J 以上のエネルギーをもち、その幅は 130fs 以下となっている。このような非常に狭いパルス幅と強いピーク強度はポンプ&プローブ測定に最適といえ、前述の考察から測定の時間分解は 100fs 程度と非常に高くなる。これはピコ秒程度と予想されるサブバンド間のエネルギー緩和時間を測定するのに十分な時間分解能といえる。

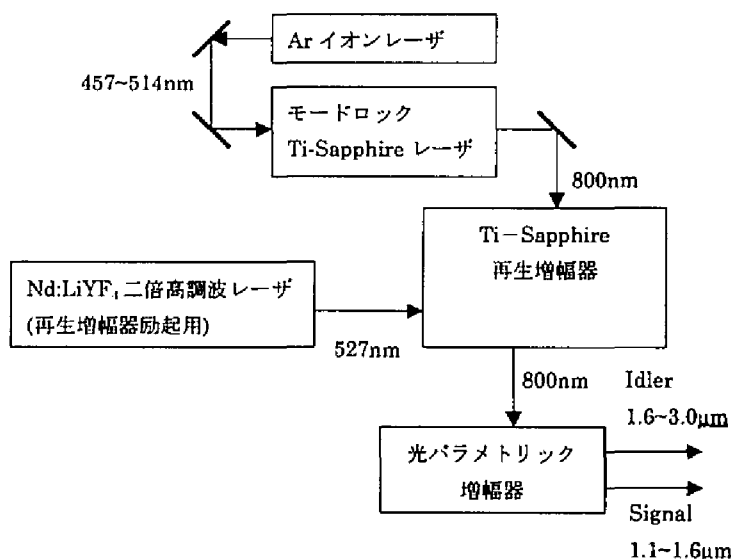


図 6.3: 測定に用いた光パルス源(OPA システム)の概略

本測定では波長の関係から後者のアイドラー光を用いて実験を行った。このアイドラー光パルスのピーク強度は 1mm²に集光するだけで 30GW/cm²となり、後述(B-3-2)のように測定に必要な光強度を満たしている。図 6.に OPA アイドラー光パルス

のスペクトルの一例を示す。同図から半値幅約 15meV の広がりを持ち、また短波長側に小さい肩を持つことが分かる。これに対して、測定対象の試料のサブバンド間吸収スペクトルは第4章で述べたように井戸幅揺らぎに起因する 120meV 程度の広い半値幅を持つ。吸収スペクトルと比較してポンプおよびプローブ光のスペクトル幅が 1/10 程度と狭いので、本測定では統計的に分布している様々な幅の量子井戸の中で、用いる光パルスの波長に共鳴する幅を持つ量子井戸のみを選択的に励起し、その特性を観測することになる。

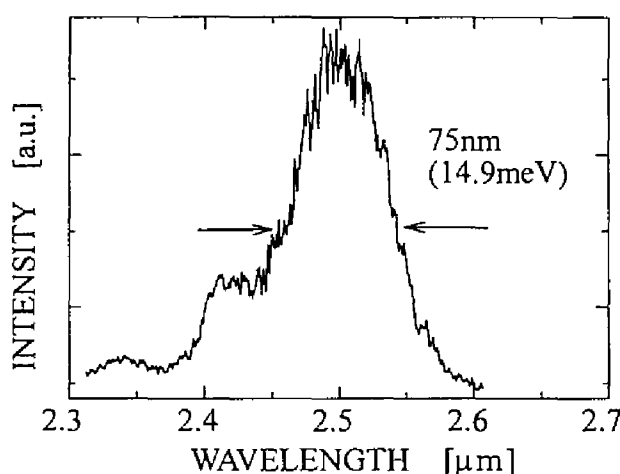


図 6.4: OPA アイドラー光パルスのスペクトルの一例

光学系および検出系

実際の測定に用いた実験系の概略を図 6.5に示す。OPA システムによって生成された、極短光パルスは石英ガラス製のビームスプリッターによって 10:1 に分割され、ポンプ光およびプローブ光となる。さらにプローブ光は ND フィルターによって 1/10~1/100 程度に弱められる。ポンプ光およびプローブ光は水平移動台とレトロリフレクタからなる光学的遅延経路を通ることで時間差が調整され、無水合成石英ガラス製のレンズによって集光され、45 度導波路構造の試料端面から試料内部に導入される。ポンプ光とプローブ光は試料内部で重なり合い、量子井戸層で吸収された後、試料の反対側の端面から出射される。そのうちのプローブ光のみを InGaAs フォトダイオー

ドを用いて検出する。雑音の影響を可能な限り抑制して、精度よく測定を行うため、チョッパーを用いてプローブ光に f_1 Hz、ポンプ光に f_2 Hz の変調をかけ、フォトダイオードの出力のうち f_1+f_2 Hz で変化する成分のみをロックイン検出した。この方法を用いれば、プローブ光強度のうち、ポンプ光によって変化する成分のみを増幅することができるので精度の高い測定が出来る。変調の周波数としては $f_1=20\text{Hz}$ 、 $f_2=30\text{Hz}$ 程度を用いた。フォトダイオードの雑音特性としてはより高周波で変調をかけるほうが望ましいが、OPA システムによって生成される光パルス列の繰り返し周波数が 1kHz と低いため、あまり高周波で変調をかけることが出来ないことを考慮して、低周波での変調を行った。

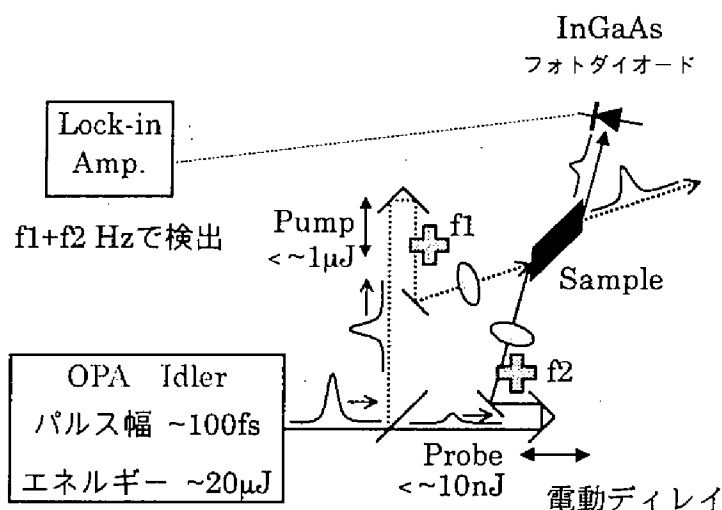


図 6.5: 実際に用いたポンプ&プローブ測定系の概略図

測定系の調整

実際の測定を行うには、測定原理から分かるようにポンプ光パルスとプローブ光パルスを(a)空間的に重ねあわせ、かつ(b)時間的に重ねあわせる必要がある。まず(a)については長波長のアイドラー光は肉眼あるいは通常の赤外線スコープでは観測できないという困難がある。そこで、試料の位置に直径 $100\mu\text{m}$ 程度のピンホールを配置し、ポンプ光およびプローブ光がそのピンホールを透過してくるように、光検出器を用いて光路を調整することで両者の重ねあわせを行った。つぎに(b)については両者の

照射時間差をピコ秒程度の範囲にしておく、つまり両者のビームスプリッターからの光路長を 1mm 程度以内で等しくなるように調整しておく必要があるが、これは全光路長が数十 cm 程度もあることを考えると、物差し等による長さ測定のみによる調整はかなり困難である。本研究では、この長さを光によって測定することで調整を行った。つまり、サブバンド間吸収以外のもっと測定の容易なバンド間の電子系の励起と緩和に伴う現象を、同じ光学経路を用いてポンプ&プローブ測定することで、ポンプ光とプローブ光の照射時刻をピコ秒程度で一致させた。これは、バンド間励起電子の緩和時間がナノ秒程度と長いため、ポンプ光照射からプローブ光照射までの時間が大きくずれていても吸収飽和の信号を捕らえることが出来るので、この信号を参考にすれば時間差を比較的容易に調整可能と考えたためである。

この方法を用いるため、試料を不純物無添加の InGaAs/AlAs 量子井戸に交換し、また光源を波長 800nm、幅 130fs のチタンサファイア・レーザに交換した。ビームスプリッターの前にはピンホールが二つ配置されており、両者の中心を通るように光路を調整することで、実際に用いるアイドラー光と殆ど同一の経路でチタンサファイア・レーザ光を測定系に通すことが出来る。このチタンサファイア・レーザによるポンプ光およびプローブ光を無添加量子井戸の表面で顕微鏡を用いて重ねあわせた上でプローブ光の光路長を変化させつつ、その強度を測定した結果を図 6.6 に示す。同図からプローブ光の照射時刻を遅らせていくと、ある時点でその強度がステップ状に増加することが分かる。これは、ポンプ光の照射によりバンド間の電子励起が生じてバンド間吸収が少なくなった結果、プローブ光の反射率が増加し、その後、励起電子の緩和時間が長いため測定範囲内では反射率の高い状態が続いているものと考えられる。¹⁷⁾ よって、この反射率が立ち上がる点においてポンプ光とプローブ光の照射時刻が一致しているといえる。そこで、この一致点にプローブ光の光学的遅延路を設定することで(b)の条件を達成した。

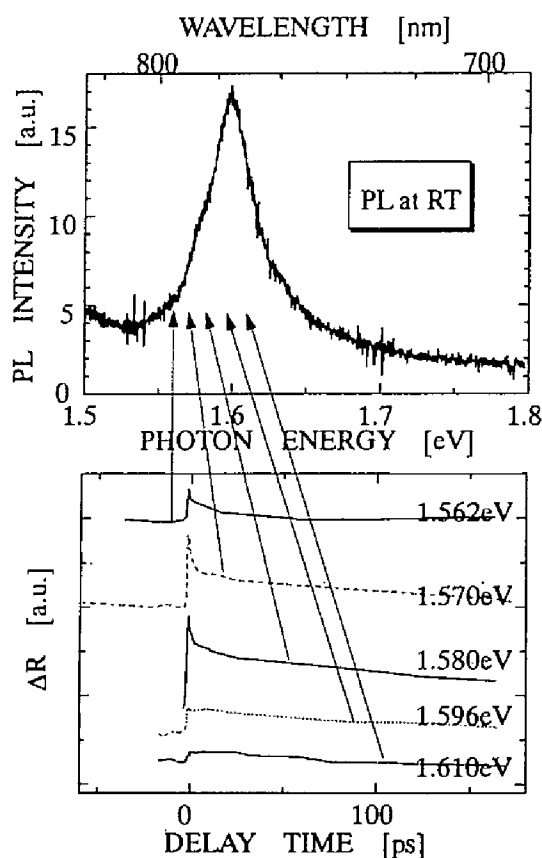


図 6.6: 光学的遅延路の長さを合わせるための無添加量子井戸による測定の一例

B-3 実験結果および考察

B-3-1 測定試料

上記の調整を行った後、ポンプ光とプローブ光の交点に試料を配置し、光源を OPA のアイドラー光に交換し、実際の測定を行った。将来的には、より短波長の試料に対する測定も行う予定であるが、初めての実験としては OPA の出力が比較的大きく、かつ量子井戸のサブバンド間吸収強度を大きく設計できる波長として $2.5\mu\text{m}$ を選択した。測定ではサブバンド間吸収量の多い試料ほど信号を捕らえやすいと考え、量子井戸層数の多い試料を用いた。その構造は、井戸層幅 10ML、井戸層の In 組成 0.3、

障壁層幅 16ML の量子井戸を 200 個積層した多重量子井戸であり、Si を井戸層のみに $1 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ の密度で添加してある。試料を 45 度導波路構造に加工し、赤外吸収測定を行うことで得られたサブバンド間吸収スペクトルを図 6.7 に示す。同図からサブバンド間吸収のピーク波長は $2.5 \mu\text{m}$ (500 meV) であり、吸収係数のピークは 2600 cm^{-1} 程度となっていることが分かる。これは、200 個の量子井戸全体の吸収として、45 度入射で 1 回反射したとすると 15% の吸収が見込める大きさである。

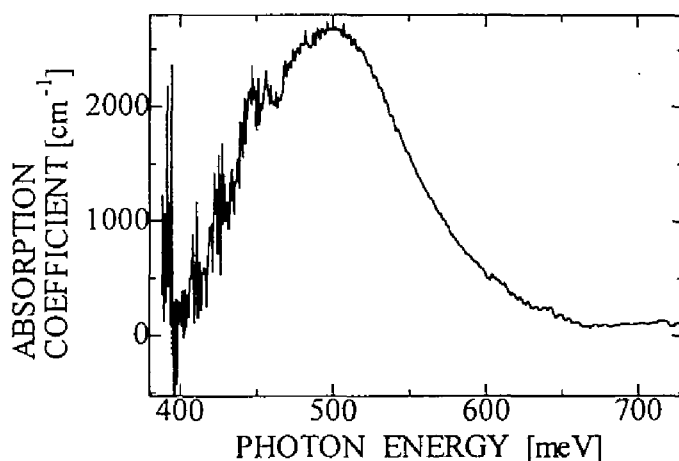


図 6.7: 測定に用いた試料のサブバンド間吸収スペクトル。

図 6.8 に OPA のアイドラー光を波長 $2.5 \mu\text{m}$ に設定して測定した透過プローブ光強度の遅れ時間依存性の一例を示す。用いたポンプ光の 1 パルスあたりのエネルギーは $2.8 \mu\text{J}$ 、プローブ光パルスの 1 パルスあたりのエネルギーは 1.8 nJ である。これらの値については後述の B-3-2 および B-3-3 で議論する。ここで、横軸の遅れ時間はポンプ光パルスに対するプローブ光パルスの相対的な到着時刻であるが、両者が一致する点は自明ではない。同図から、ある遅れ時間において透過プローブ光強度が急激に増加し、その後、数 ps の時間をかけて徐々に透過光強度が低下する様子が分かる。この透過プローブ光強度の急激な増加は、ポンプ光とプローブ光の到着遅刻が一致したため、プローブ光が吸収飽和の影響を受けるようになったことを示し、またその後の透過強度の低下はサブバンド間の励起電子のエネルギー緩和に伴って吸収飽和が小さ

くなることを示していると考えられる。(目盛り 7 ps 付近でもう一度プローブ光の増加があるが、これについては後述の B-3-3 で議論する。)この、透過光強度の低下は指数関数的減衰を示しており、フィッティングを行うことで $1/e$ 緩和時間約 3ps という値が得られた。これは、遷移波長 $2.5\mu\text{m}$ という短波長領域において、著者の知る限り、はじめて観測されたサブバンド間電子励起のエネルギー緩和時間である。これを他者による長波長サブバンド間遷移におけるエネルギー緩和時間の測定結果および、LO フォノン散乱時間の理論計算結果と比較した結果を図 6.9 に示す。同図から、 $2.5\mu\text{m}$ まで短波長化された場合においても、 $10\mu\text{m}$ 付近の長波長領域で観測された緩和時間とほぼ同等の値が得られており、短波長化した場合でも超高速の緩和時間は維持されていることが分かった。この結果は、短波長化サブバンド間遷移が超高速のデバイスに応用可能であることを直接的に示しており、非常に有用といえる。しかしながら理論計算値と比較すると、実験結果は計算結果の 2 倍程度の値となっていることが分かる。この違いの原因は現在のところ明らかになっていないが、この理論計算において仮定している LO フォノンの量子井戸への完全な閉じ込めが、本研究で用いた非常に幅の狭い量子井戸において成立していない可能性などが指摘できる。

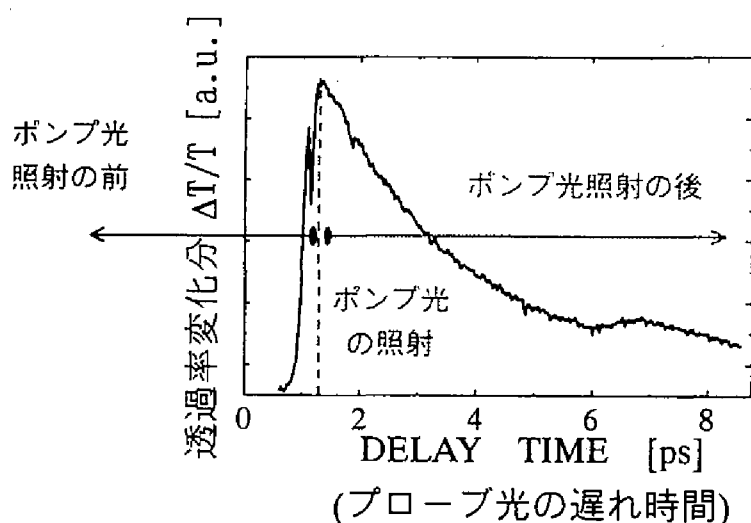


図 6.8: ポンプ&プローブ法によって測定したサブバンド間吸収飽和の過渡特性の一例

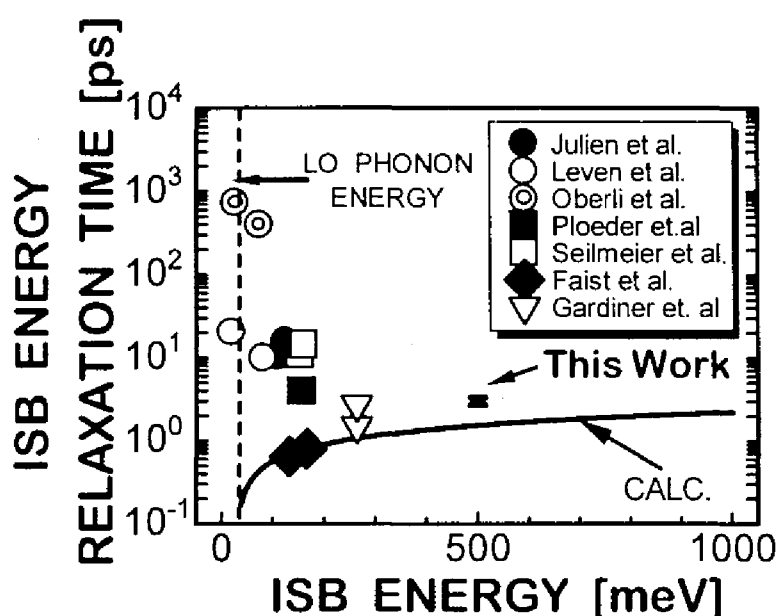


図 6.9: サブバンド間エネルギーと緩和時間の関係 7-12)

さらに本研究では、ポンプ光の強度、プローブ光の強度、ポンプ・プローブ光の波長等をパラメータとして変化させて、詳細な測定を行った。

B-3-2 ポンプ光強度依存性

B-3-1 と同じポンプ・プローブ光波長 $2.5\mu\text{m}$ 、プローブ光パルス・エネルギー 1.8nJ の条件で、ポンプ光の一パルスあたりのエネルギーを 57nJ から 3500nJ まで変化させた場合の吸収飽和過渡特性の変化を図 6.10 に示す。同図から、ポンプ光強度の 57 から 2800nJ までの増加に伴って、吸収飽和による透過率の増加量 (ΔT) が大きくなり、そこで飽和していることが分かる。 ΔT が最大値を示した 2800nJ のポンプ光パルスにおける ΔT の絶対値 (元々のプローブ光強度に対する変化分の割合) は 15% 程度であり、これは 45 度導波路内の一回の反射による吸収 (15%) がほぼ飽和したとして説明できる値である。つまり、この試料では寸法から考えて成長表面で入射光が 4 回の反射を繰り返すが、プローブ光とポンプ光との間の入射角に差があるため、その中でいずれか一つの反射点でのみポンプ光とプローブ光が重なっていると考えられる。その様子を

図 6.11に模式的に示す。また図 6.10において、さらに大きな 3500nJ のポンプ光強度の場合には、 ΔT が逆に減少しかつ測定波形に雑音が多くなることが見てとれる。これは、2800nJ 程度以上にポンプ光を強くしても、すでにサブバンド間吸収は完全に飽和しているため、これ以上の透過率の増大が見込めないところに、ポンプ光の散乱成分が光検出器に入り込む量が増加したため、検出器の感度飽和現象が生じた結果と推測されており、本質的現象ではないと考えられる。

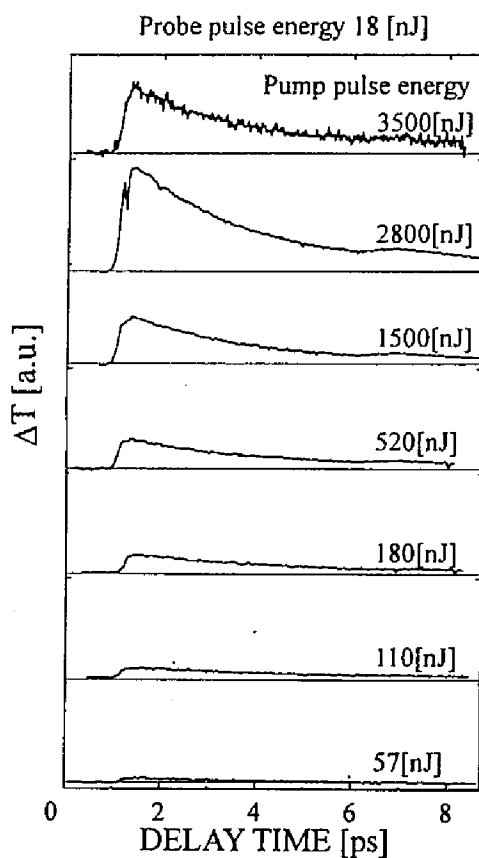


図 6.10: サブバンド間遷移の吸収飽和過渡特性のポンプ光強度依存性

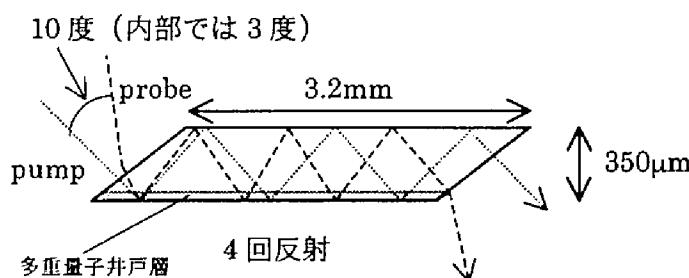


図 6.11: 45度導波路構造内でのポンプ光およびプローブ光の重なる模式図

吸収飽和エネルギー

さらに詳細な検討を行うため図 6.10から ΔT の最大値 ΔT_{\max} を読み取り、それをポンプ光パルス・エネルギーの関数として表示したのが図 6.12である。 ΔT_{\max} はポンプ光とプローブ光が時間的に重なった時の透過率変化であり、緩和の影響を受けないポンプ光によって生じる吸収飽和の大きさを示しているといえる。この実験で用いた光パルスは幅 100fs と小さく、サブバンド間励起電子のエネルギー緩和時間 $\sim 3\text{ps}$ と比較して非常に小さいため、吸収飽和の生じる度合いは定常光の場合と異なり入射光のピーク強度ではなく、入射光パルスのエネルギーすなわち光子数の関数となる。ここで、エネルギー J のポンプ光パルスが入射し、吸収飽和が生じた結果低下した吸収係数 $\alpha(J)$ は次式で表現できる。

$$\alpha(J) = \alpha_0 \times \frac{1}{1 + J/J_s} \quad (6-1)$$

ここで α_0 は飽和のないときの光吸収係数、 J_s は吸収飽和エネルギーであり、 $J = J_s$ のときに $\alpha(J)$ は α_0 の半分になる。この式を用いると ΔT_{\max} のポンプ光パルス・エネルギー依存性は次の式で表わすことができる。

$$\Delta T_{\max} = A \times [\exp(-\alpha(J) \cdot L_e) - \exp(-\alpha_0 \cdot L_e)] \quad (6-2)$$

ここで、 A はプローブ光強度に比例した定数であり、 L_e は第 4 章で述べた実効的な井

戸層総厚である。この式を用いてフィッティングを行った結果が図 6.12中の破線である。フィッティング結果は実験結果と比較的よく一致しており、吸収飽和エネルギー J_0 は 500nJ と評価できた。

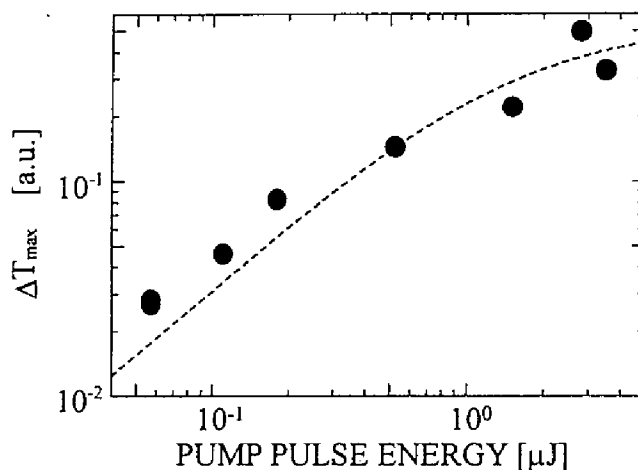


図 6.12: 図 6.10から読み取った透過率変化の最大値のポンプ光パルスエネルギー依存性

この 500nJ のエネルギーが半径 0.5mm のスポットに集光されていると仮定し、その 15%が多重量子井戸層での一回の反射で吸収されると体積密度にして $1.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 程度の電子を励起することになる。但し、光パルスの幅が 100fs と励起電子の緩和時間($\sim 3\text{ps}$)に比べて非常に短いため励起中の緩和は無いとし、また試料端面での反射、45 度での入射等は考慮した。これに対して図 6.7に示した線形サブバンド間吸収の強度から見積もられる第 1 サブバンドの電子密度は $1.4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 程度であり、図 6.に示した OPA-アイドラー光のスペクトル線幅(15meV)がサブバンド間吸収スペクトルの幅(120meV)の 1/10 程度であることを考慮すると、OPA-アイドラー光の吸収に寄与する電子の密度は $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 程度となる。ポンプ光パルスによって励起される電子密度と第 1 サブバンドの電子密度が同程度であることから、吸収飽和エネルギーが 500nJ という実験結果は定量的に妥当といえる。また、仮定したポンプ光の集光半径 0.5mm は 45 度導波路構造の端面が 0.5mm の幅を持つことを考えると、それほど不適當ではない値といえる。

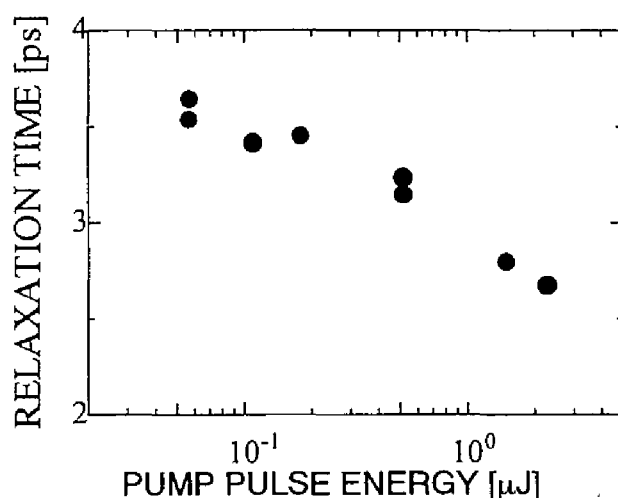


図 6.13: エネルギー緩和時間のポンプ光強度依存性

緩和時間の変化

さらに図 6.10 に示した ΔT の時間経過に伴う減少傾向からエネルギー緩和時間を求め、ポンプ光パルスエネルギーの関数として表示したのが図 6.13 である。同図からポンプ光強度の増加に伴ってエネルギー緩和時間が低下することが分かる。ポンプ光パルスエネルギー 57 nJ の場合に緩和時間は 3.5 ps であるのに対し、2800 nJ では 2.7 ps と 20% 以上も減少している。このようにポンプ光強度の増加によって緩和時間の変化が生じる可能性としては、以下のような機構が考えられる。

1. 強励起によって第2サブバンドに励起されている電子がさらに連続状態等の高いエネルギーの状態に励起されるため、基底状態への緩和の過程が変わって、エネルギー緩和時間が変化する。
2. 強励起によって第2サブバンドに多数の電子が励起されるためバンド非放物線性の効果が大きくなって、エネルギー緩和時間が変化する。
3. 試料の温度が局所的に増加して電子のエネルギー分布が変化し、バンド非放物線性の効果と複合してエネルギー緩和時間が変化する。

このなかで、1 は高いエネルギー状態からの緩和は第 2 サブバンドからの緩和に比べて遅いため、ポンプ光強度の増加に伴って緩和時間は長くなると考えられ、観測されている傾向とは逆である。¹²⁾ また上で議論したように、用いた最大のポンプ光強度で始めてサブバンド間吸収の完全な飽和が生じる程度である。つまり、この実験の範囲内では、さらに高いエネルギー状態への遷移を緩和時間に変化が生じるほど大量に生じさせるだけのポンプ光強度は用いていない。この二点により 1 の機構は除外できる。

2 は、図 6.14 に模式的に示すようにバンド非放物線性により第 1 サブバンドにおける電子の井戸平面内方向の運動に対する有効質量($m_{//1}$)が第 2 サブバンドのそれ($m_{//2}$)よりも小さいため、井戸面内の運動量が大い電子ほど小さい波数の LO フォノンの放出で緩和できることによる効果である。サブバンド間の緩和に伴う LO フォノンの放出確率は、放出されるフォノンの波数 q に逆比例するため、^{3,18)} 第 2 サブバンドが高エネルギー側まで電子で満たされているほど平均の緩和時間は短くなると考えられる。ここで用いた試料構造に対して第 5 章の方法で $m_{//}$ を求めると $m_{//1} = 0.076 m_0$ 、 $m_{//2} = 0.10 m_0$ と計算される。第 2 サブバンドの電子のエネルギーを第 2 サブバンドの底から計って E_2 とし、LO フォノンのエネルギーを $\hbar\omega_{LO}$ とすると、サブバンドの緩和に伴って放出される LO フォノンのエネルギー波数 q は次式で表現できる。

$$q = \frac{\sqrt{m_{//1}(E_{ISB} - \hbar\omega_{LO} + E_2)}}{\hbar} - \frac{\sqrt{m_{//2}E_2}}{\hbar} \quad (6-3)$$

ここで、第 1 サブバンドの電子の半分が第 2 サブバンドに遷移し、その後サブバンド内緩和により平衡状態に達したとすると、第 2 サブバンドの電子の平均エネルギーは 27 meV 程度となり、 $1/q$ は上式から 1.4×10^{-9} m と計算される。また、電子が第 2 サブバンドにほとんど存在しない場合には平均エネルギーは 0 meV となり、 $1/q$ は 1.14×10^{-9} m である。よって、励起電子数が 0 に近い場合と比較して、励起電子数が最大の時、LO フォノン放出確率は 20% 程度増加することがわかる。これは、観測された強励起に伴うエネルギー緩和時間の減少と定量的に一致しており、2 の機構の関与は大きいといえる。

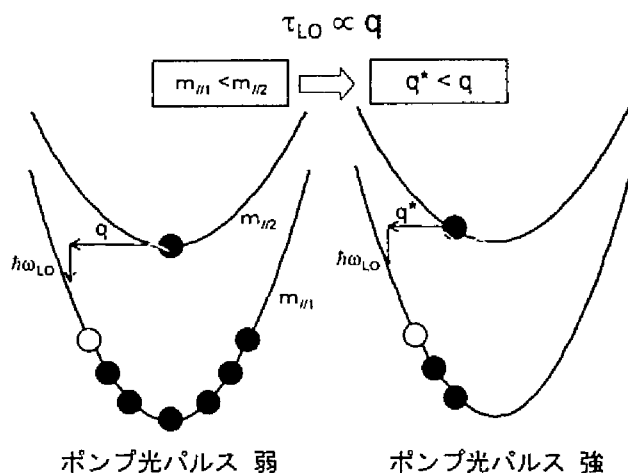


図 6.14: バンド非放物線性が LO フォノン放出時間に与える影響

また 3 については、温度上昇が緩和時間に影響を及ぼすとするポンプ光照射後の数百フェムト秒以内に温度が上昇している必要があるが、このような短い時間では格子温度は上昇し得ない。よって、可能性としては、ポンプ光が自由キャリアー吸収 (free carrier absorption) により吸収されて直接的に各サブバンドの電子系の温度が上昇する可能性が考えられる。この試料での自由キャリアー吸収係数は、ホール測定による移動度の評価 $1000 \text{ cm}^2/\text{vs}$ と、 Γ 谷第一サブバンドの電子密度 $1.4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ とを用いて $60 \sim 120 \text{ cm}^{-1}$ と見積もることができる。よって、これにより多重量子井戸を透過して一回反射することにより、ポンプ光パルスエネルギーの 0.3~1% が吸収され、直接的に電子の運動エネルギーとして供給される。前述の検討をもとにポンプ光 (最大 $3 \mu\text{J}$) の集光半径を 0.5 mm と仮定すると、1 電子あたりに供給されるエネルギーは最大でも $8 \sim 28 \text{ meV}$ 程度と見積もられる。このように電子の平均エネルギーが増加すると、上述のバンド非放物線性の影響を通して LO フォノン放出確率が増加する。この平均エネルギーの増加は $8 \sim 28 \text{ meV}$ であり、機構 2 の場合の平均エネルギー増加量 27 meV と同程度にもなる。よって最大で機構 2 と同程度、すなわち 20% 程度の緩和時間の増加を生じさせる可能性があり、その関与は大きいといえる。

以上の検討から、励起電子数の増加および自由キャリア吸収による第 2 サブバンドの平均電子エネルギーの増加がバンド非放物線性を通して LO フォノン放出確率を上昇させる機構により最大 40% 程度の緩和時間の減少を生じさせ得ることが分かった。これは、観測された緩和時間の 20% の減少を説明できるだけの大きさを持ち、これらの機構が緩和時間減少の主要な原因であると結論できる。

B-3-3 プローブ光強度依存性

つぎに、ポンプ光強度を一定とし、プローブ光の強度のみを変化させた場合の吸収飽和過渡特性について検討を行った。ポンプ光パルスのエネルギーを $1.8\mu\text{J}$ に固定して、プローブ光パルスのエネルギーを 0.18nJ から 150nJ まで変化させ、透過プローブ光強度の変化分(ΔT)の過渡特性を測定した。その結果を図 6.15 に示す。また同図から、 ΔT の最大値 ΔT_{max} を求め、プローブ光強度の関数として表示した結果を図 6.16 に示す。同図からプローブ光強度が 0.18nJ から 5.7nJ の間は ΔT_{max} がプローブ光強度に比例して増加するが、そこで ΔT_{max} は飽和し、その後プローブ光強度の増加とともに ΔT_{max} は減少する。これは、プローブ光自身の吸収によって吸収飽和が生じることで(ポンプ光がない場合でも)プローブ光透過率が増加しているため、さらにポンプ光の照射が重なったとしても、それによって生じる吸収飽和による透過率の増加が小さくなるためと説明できる。実際、 ΔT_{max} の飽和の生じ始める 10nJ 程度のプローブ光強度では、ポンプ光の場合と同様の計算を行い、半径 0.25mm のスポットサイズにプローブ光が集光されていると仮定すると、 $2 \times 10^{16}\text{cm}^{-3}$ 程度の密度の電子が励起されることになる。これは B-3-2 で検討した本測定に寄与する電子の密度 $2 \times 10^{17}\text{cm}^{-3}$ の $1/10$ 程度であり、吸収飽和を生じさせ得るほどの大きさといえる。よって上記の説明は定量的にも妥当といえる。また、ここでは B-3-2 で述べたポンプ光の集光半径(半径 0.5mm)と比較して小さいプローブ光集光半径(半径 0.25mm)を仮定している。これは全プローブ光に対してポンプ光の影響が及ぶことを意味し、プローブ光の変化を測定するには有利な構成であることからこの仮定の妥当性は高いといえる。

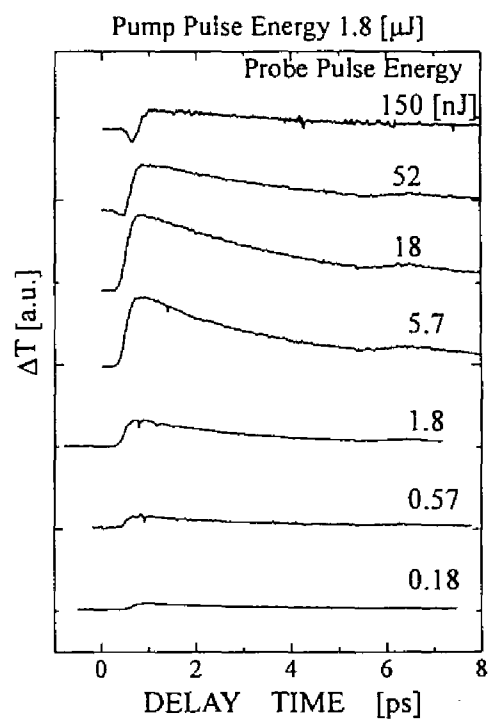


図 6.15: サブバンド間遷移の吸収飽和過渡特性のプロープ光強度依存性

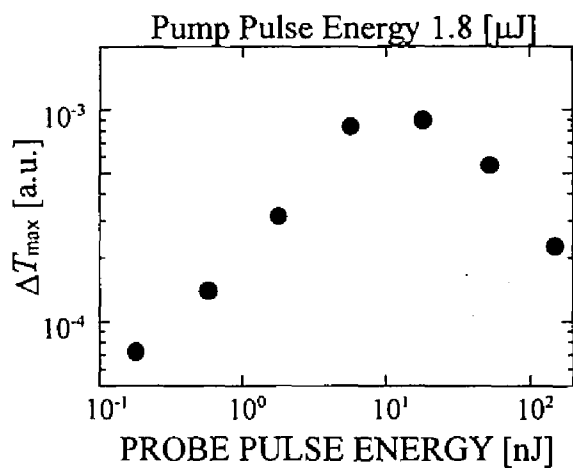


図 6.16: 図 6.15から読み取った透過率変化の最大値のプロープ光強度依存性

プローブ光が強い場合

図 6.15に示したプローブ光強度がもっとも大きい付近の ΔT の過渡特性を観察すると、プローブ光とポンプ光が重なる時点での ΔT が増加ではなく逆に減少しており、その傾向はプローブ光エネルギーが大きいほど強いことが分かる。この原因は明らかになっていないが、ポンプ光パルスとプローブ光パルスが時間的に重なっている場合にのみ、透過プローブ光強度が減少していることから、2次高調波発生等の非共鳴の光非線形効果^{19,21)}によりプローブ光のエネルギーが光検出器に検出できない波長に変換されている可能性が考えられる。光非線形効果であればプローブ光の強度が強い場合にのみ生じ、かつポンプ光と時間的に重なっている場合のみに生じるという結果を説明しやすいといえる。

緩和時間

また、図 6.15を指数関数型減衰関数でフィッティングすることによりエネルギー緩和時間のプローブ光強度依存性についても検討を行った。しかしながら、プローブ光強度が弱い場合には雑音の影響が大きくなること、プローブ光強度が大きい場合には上記の光非線形の効果などが影響してくること等のため、得られた緩和時間はばらつきが大きく、信頼性の低いものであった。その結果を図 6.17に示す。プローブ光強度を 0.18nJ から 150nJ まで変化させたとき、測定された緩和時間は 2.5~4ps 程度の間で不規則にばらついており、信頼できる結果とは言い難い。今後、雑音対策などを行うことで、より詳細な測定を行う必要があるといえる。

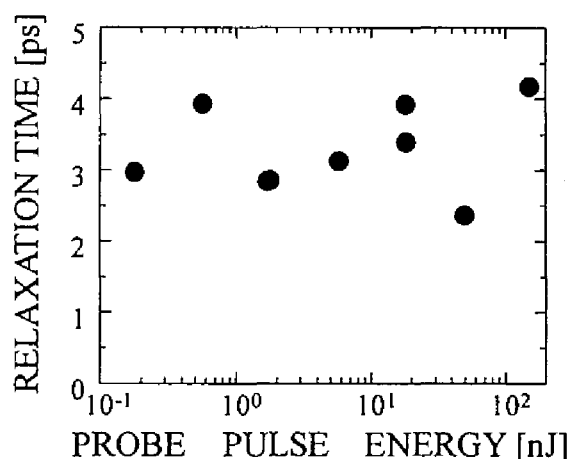


図 6.17: サブバンド間のエネルギー緩和時間のプローブ光強度依存性

二つ目のピーク

図 6.15の透過率過渡特性を詳しく観察すると、最初の透過率の立ち上がりから 5.5~6ps 後に二つ目の透過率が上昇するピークが存在することが分かる。これをわかりやすく示すため、プローブ光パルス・エネルギーが 18nJ の場合について、縦軸を対数表示に直した波形を図 6.18に示す。同図から、第一ピークの立ち上がり時間は 0.4ps 程度であるのに対して第二ピークの立ち上がり時間は 1.1ps 程度と遅いこと、および第一ピークと第二ピークの強度比が 10:1 程度であることが分かる。また、他の波形についても第一ピークと第二ピークの強度比を評価し、プローブ光パルス・エネルギーの関数として表示したのが図 6.19であり、ポンプ光パルスエネルギーの関数として表示したのが図 6.20である。これら二つの図から、多少のばらつきはあるものの、プローブ光強度、ポンプ光強度に関わらず両ピークの強度比は 10~15%程度と一定であると言える。また、第 2 ピークが立ち上がるまでの時間についても評価を行ったが、やはりプローブ光強度、ポンプ光強度に関わらず遅れ時間は一定であった。

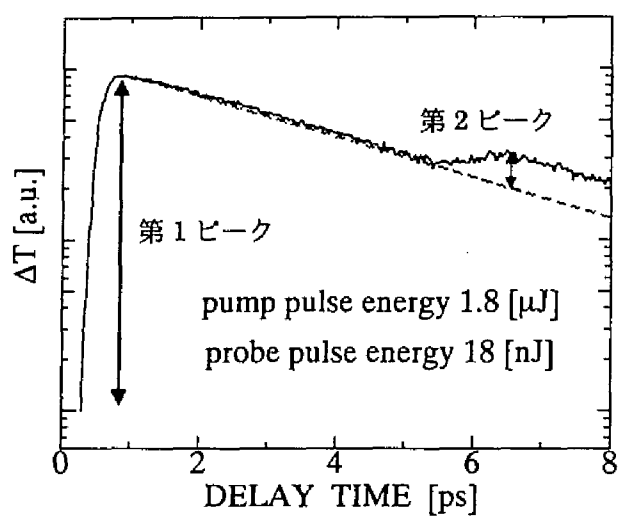


図 6.18: サブバンド間吸収飽和の過渡特性の第 1 ピークと第 2 ピーク

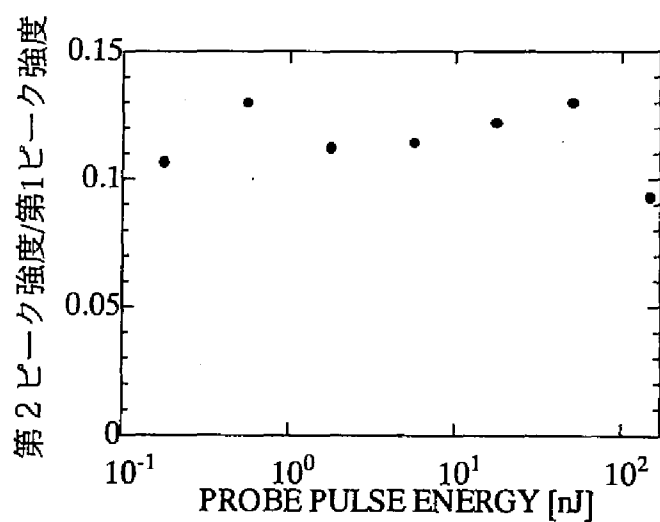


図 6.19: 第 1 ピークと第 2 ピークの強度比のプローブ光強度依存性

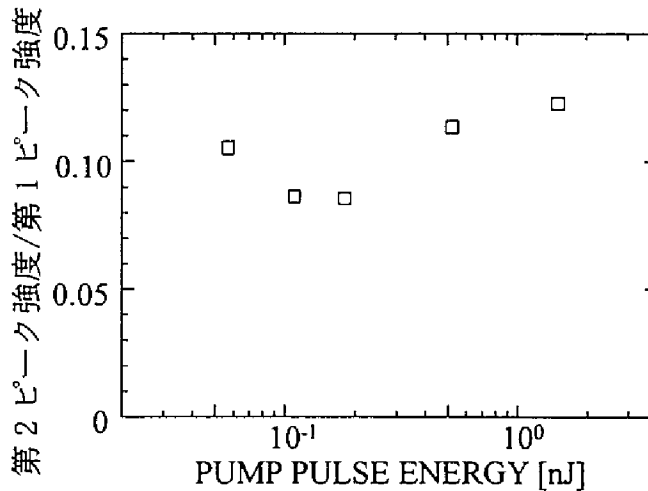


図 6.20: 第 1 ピークと第 2 ピークの強度比のポンプ光強度依存性

この第二ピークの生じる理由を調べるため下に示す三つの仮説を立て、それぞれ検討を行った。

- (A) 45 度導波路の出口端面で反射されたポンプ光の一部が導波路を逆向きに伝搬し、時間的に遅れてもう一度プローブ光と重なっている。(図 6.21)
- (B) 第 2 サブバンドから第 1 サブバンドへの直接の緩和過程に加えて、X 谷サブバンド等の中間的な準位を緩和過程が存在する。(図 6.22)
- (C) 第 2 サブバンドから更に高エネルギー側にある連続状態等の準位にも電子が励起された状態から緩和が始まる。(図 6.23)

まず(A)については試料の寸法を考慮すると図 6.21に示すように、最短経路で反射ポンプ光が戻ってきたとしても、もう一度プローブ光と重なるには 10ps の時間遅れが必要であり、観測された第二ピークの 5.5~6ps の遅れとは定量的に一致しない。(B)については図 6.22に示した各準位間の緩和時間をパラメータとして、レート方程式を立て、電子の緩和過程を検討した。初期状態として第一サブバンドの電子数 n_1 と第二サブバンドの電子数 n_2 が等しく、完全に吸収飽和が生じている状態を仮定し、その後の緩和によって透過率に比例する量 $1 \cdot (n_1 \cdot n_2)$ がどのように変化するかを計算した。計

算結果の一例を図 6.24に示す。但しサブバンド間の緩和時間 τ_{12} としては実験値の 3ps を用い、第二サブバンドから中間準位への緩和時間 τ_{2x} および中間準位から第一サブバンドへの緩和時間 τ_{x1} の二つを変化させた。同図から、緩和時間として種々の値を仮定しても、観測されたような二重ピークはまったく現れないことが分かる。よって、この機構では観測された第 2 ピークを説明できないと分かった。また同図から、第二サブバンドから中間準位への緩和が速く、かつ中間準位から第一サブバンドへの緩和時間が遅い場合には中間準位に電子が溜まるため、透過率減少の傾きが途中で緩やかになる傾向が見られる。これに対して図 6.24に示した実験結果では、そのような透過率減少傾向の変化は第 2 ピークが立ち上がった後にも観測されていない。このことから、サブバンド間のエネルギー緩和に遅い成分を生じさせるような中間準位への緩和は存在しないか、あるいはその寄与が非常に小さいといえる。よって、当初危惧されたの短波長化サブバンド間遷移における複雑な遅い緩和過程の寄与の可能性は否定できた。

また、(C)についても(B)の場合と同様にレート方程式を立てて検討を行ったが、やはりパラメータを広く振っても第二ピークが生じるような計算結果は得られなかった。よって、この機構でもやはり観測結果を説明できないことが分かった。そもそも、励起電子の緩和の過程はポンプ光照射の瞬間から生じることから、どのような緩和過程を仮定しても観測された 5.5~6ps 後にピークとなって現れるような現象は説明できないのではないかと考えられる。また、ポンプ光強度やプローブ光強度を変化させても、第 2 ピークの様子がまったく変わらないことを考えると、緩和過程に起因した本質的な現象というよりも、測定系に起因するような外的な現象であると可能性が高い。具体的な要因は明らかではないが、何らかの経路でポンプ光が一定の時間遅れを持ってもう一度プローブ光と重なっていると考えるのが最も妥当といえる。

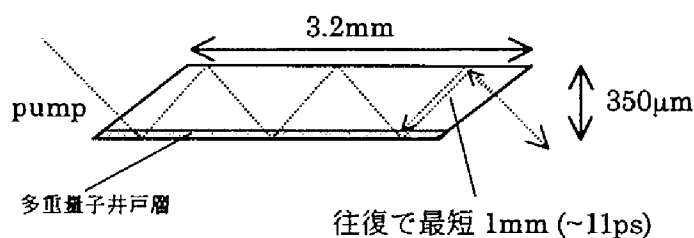


図 6.21: 端面での反射によるポンプ光パルスのエコー

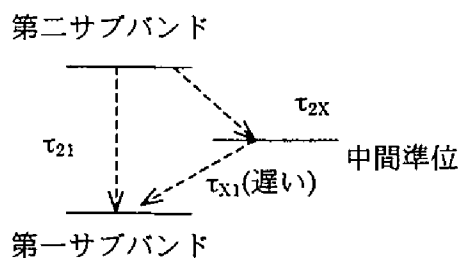


図 6.22: 中間準位の経由を仮定した場合の緩和モデル

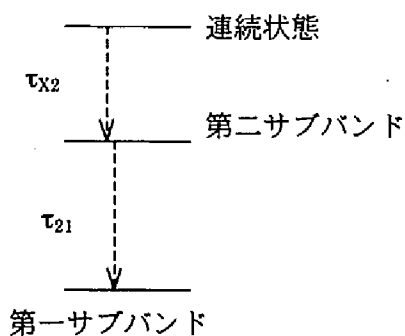


図 6.23: 連続状態への電子の励起を仮定した場合の緩和モデル

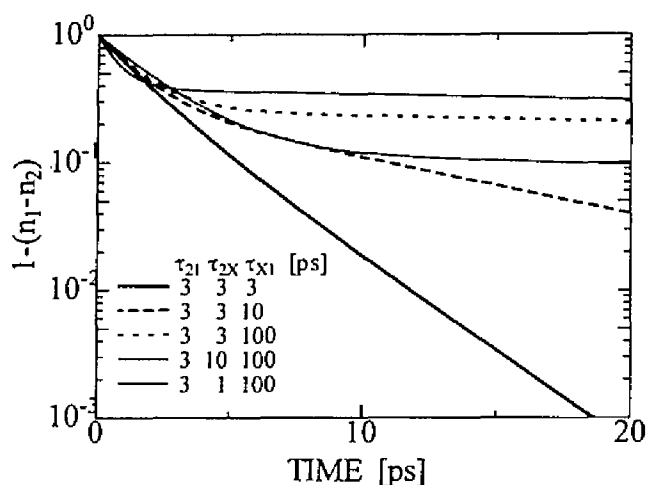


図 6.24: 中間準位モデルを用いて計算したによる励起電子の緩和特性

B-3-4 ポンプ・プローブ光波長依存性

さらに、パルス光源が可変波長であることを活用して、吸収飽和過渡特性のポンプ・プローブ光波長依存性について検討を行った。図 6.25にポンプ光パルス・エネルギーを約 700nJ、プローブ光パルス・エネルギーを約 1.5nJ に固定し、両者の波長のみを 2.29 μ m (540meV)から 2.47 μ m(500meV)まで変化させた場合のサブバンド間吸収飽和の過渡特性を示す。同図から、波長の変化に対する吸収飽和過渡特性の変化はそれほど大きくないことが分かる。変化させた波長の範囲はエネルギーにして 40meV 程度であり、これは、図 6.7に示した測定試料のサブバンド間吸収スペクトルの半値半幅 60meV と同程度である。第 4 章で議論したように、本構造におけるサブバンド間吸収スペクトルの幅は主に井戸層幅の揺らぎによって生じている。これに対して OPA・アイドラー光のスペクトルは図 6.に示したように 14meV 程度と狭いので、アイドラー光の波長と共鳴するサブバンド間遷移波長をもつ井戸層幅の領域のみを、選択的に測定していることになる。よって、アイドラー光波長をサブバンド間吸収ピーク位置から高エネルギー側に 40meV 振ることは、サブバンド間遷移エネルギーが

500meV から 540meV までの種々の井戸幅の試料を測定しているのと同等といえる。
 図 6.25 を指数関数的減衰関数によってフィッティングし、エネルギー緩和時間を求め、それをポンプ・プローブ光波長の関数として表示したのが図 6.26 である。同図からポンプ・プローブ光波長の変化に対し、励起電子のエネルギー緩和時間は 3.2ps 程度でほとんど一定であることが分かる。理論的にはエネルギー緩和時間の大部分を占めるサブバンド間の LO フォノン散乱時間はサブバンド間エネルギーの平方根に比例するので、サブバンド間エネルギーが 500meV の井戸に対して 540meV の井戸では緩和時間が 4% すなわち 0.1ps ほど増加することが予想される。しかしながら、今回の実験の精度では、その違いを検出することはできなかった。

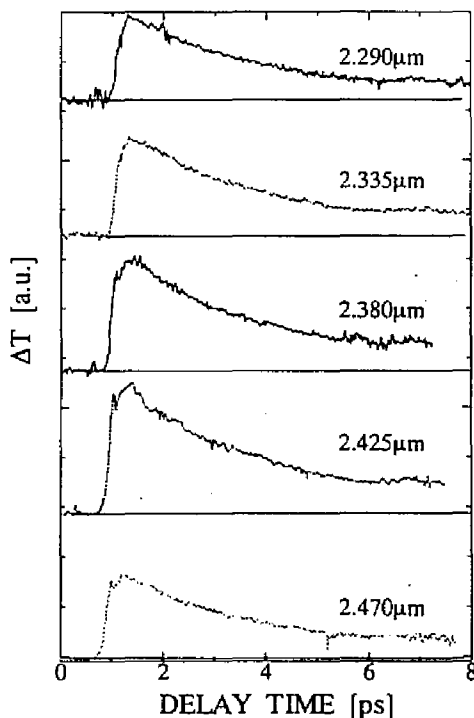


図 6.25: サブバンド間吸収飽和の過渡特性のポンプ・プローブ光波長依存性

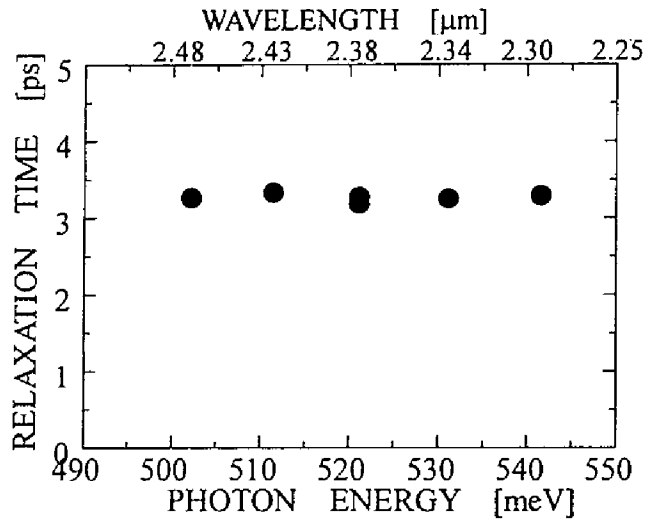


図 6.26: サブバンド間のエネルギー緩和時間の波長依存性

B-4 まとめ

ポンプ&プローブ法によりサブバンド間の電子励起の緩和特性を直接的に測定し、遷移波長が $2.5\mu\text{m}$ と短波長化された場合でもエネルギー緩和時間が 3ps 程度と非常に速いことを示した。また当初、短波長化に伴って遅い緩和過程の関与が生じる可能性が危惧されたが、実際にはそのような過程は存在しないか、あるいはその寄与が非常に小さいことが実験的に示された。以上、短波長化サブバンド間遷移の超高速デバイスへの応用可能性を示すことができた。

C 位相緩和時間

つぎに、サブバンド間遷移における電子分極と光との結合が壊れるまでの平均時間、すなわち位相緩和時間について検討を行った。位相緩和時間(τ_{phase})は一般に光非線形効果の大きさを決める重要なパラメータであり、提唱している全光変調の効率に関わっている。²²⁾ 図 6.27に提唱しているサブバンド間光によるバンド間光変調の特性を、異なる位相緩和時間($\tau_{\text{phase}}=0.1\text{ps}$ および 0.05ps)を仮定して第 2 章で述べた方法で

理論計算した結果を示す。同図から線形なバンド間吸収特性は位相緩和時間が変わってもほぼ等しいのに対して、光非線形効果によって生じるサブバンド間光照射によるバンド間吸収増加分は位相緩和が速くなると急速に小さくなることから分かる。よって、変調効率の観点から位相緩和は遅いほうが望ましい。通常の量子井戸では、位相緩和時間として一般にサブピコ秒程度が報告されている。¹⁾しかしながら位相緩和時間はイオン化不純物散乱や電子電子散乱の影響を強く受けることが知られており、¹⁾本研究で用いた量子井戸構造では、 $1 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ 程度と多数の n 型不純物を井戸層に添加して電子を供給しているため通常の量子井戸よりも位相緩和が速くなり、提唱している全光変調への応用が困難になる可能性がある。よって本節では、短波長化サブバンド間遷移の光—光変調等の非線形デバイスへの応用可能性を探るため、本構造における位相緩和時間について実験および理論の両面から検討を行った。

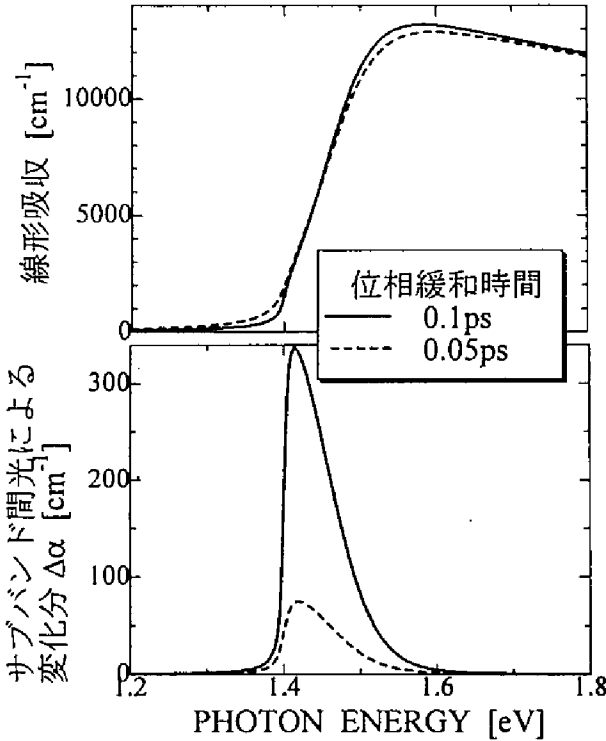


図 6.27: 位相緩和時間と変調特性の関係

C-1 実験的検討

通常の長波長サブバンド間遷移では、式(4-1)から分かるように不確定性原理に基づくサブバンド間吸収スペクトル広がり幅からこの位相緩和時間を推定することが可能であるが、本研究で検討している短波長化サブバンド間遷移では第4章で述べたように吸収半値幅が井戸幅の揺らぎで決まっているため、通常の方法では位相緩和時間を調べるのが困難である。そこで、本研究では強励起時のサブバンド間吸収飽和の定常的な特性である吸収飽和強度が位相緩和時間とエネルギー緩和時間の積によって決まること²³⁾を利用し、サブバンド間吸収飽和強度の測定結果とポンプ&プローブ法によるエネルギー緩和時間の測定結果の二つを用いて位相緩和時間を求めた。また、位相緩和時間に対する不純物添加の影響を調べるため、測定は添加密度の異なる幾つかの試料に対して行った。

C-1-1 測定方法

図6.28にサブバンド間吸収の定常的な飽和特性を測定するための実験系を模式的に示す。モードロック・チタンサファイア・レーザによって励起された光パラメトリック発振器(Optical Parametric Oscillator: OPO)を光源とし、45度導波路型に加工した試料に入射させるサブバンド間光強度を変えつつ、サブバンド間遷移による光吸収の大きさの変化を測定した。二つの異なる周波数でロックイン検出を行うことにより、試料に入射する光の強度と、試料を通ることでサブバンド間吸収を受けた後の光の強度とを、同一の光検出器で同時に測定することにより、測定精度を高めている。光源として用いたOPOは波長2.3~2.8 μm で動作し、幅2psの光パルスを80MHzの繰り返しで放出し、その平均出力は100mW程度である。用いた光パルスの幅が2psとサブバンド間の緩和時間と同程度であるため完全な定常状態での測定とは言えないが、測定結果に後述の方法で理論的に補正をかけることで定常状態の特性を求めた。

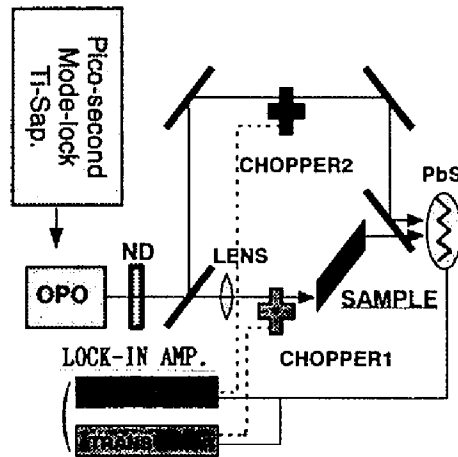


図 6.28: 吸収飽和強度測定系

C-1-2 測定結果

測定に用いた試料は井戸層の幅 10ML、In 組成 0.3、障壁層の幅 16ML の InGaAs / AlAs 量子井戸を 30 層積層した多重量子井戸構造である。位相緩和時間の不純物添加密度依存性を調べるため、井戸層に添加する n 型不純物(Si)の活性化密度が 5×10^{17} 、 1×10^{18} 、 1.2×10^{18} および $1.4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ と異なる 4 つの試料を用意した。試料のサブバンド間吸収ピーク波長は $2.5 \mu\text{m}$ であり、測定は OPO の発振波長を $2.5 \mu\text{m}$ に設定して行った。測定結果の一例を図 6.29 に示す。同図から入射光強度が増加するに従って試料のサブバンド間吸収の吸収度が低下して、確かに吸収飽和が生じている様子が分かる。同図の結果を吸収飽和特性を表す下の式²³⁾によって評価し、特性を表すパラメータである吸収飽和強度 I_s を求めた結果 2.7 MW/cm^2 という値が得られた。

$$\alpha(I) = \frac{\alpha_0}{1 + I/I_s} \quad (6-4)$$

ただし、ここで I は入射光の強度、 α_0 および $\alpha(I)$ はそれぞれ入射光強度が 0 および $I \text{ W/cm}^2$ の時のサブバンド間吸収の吸収係数である。また、この評価の際には 45 度導波路にサブバンド間光を導入する際に用いたレンズによる、試料内部における光のスポットサイズ変化の影響も考慮した。測定は他の試料についても行い、同様に吸

吸収飽和強度を評価した。その結果を図 6.30 に吸収飽和強度の不純物添加密度依存性として示す。同図から n 型不純物添加密度が増すに従って、吸収飽和強度が大きくなることが分かる。

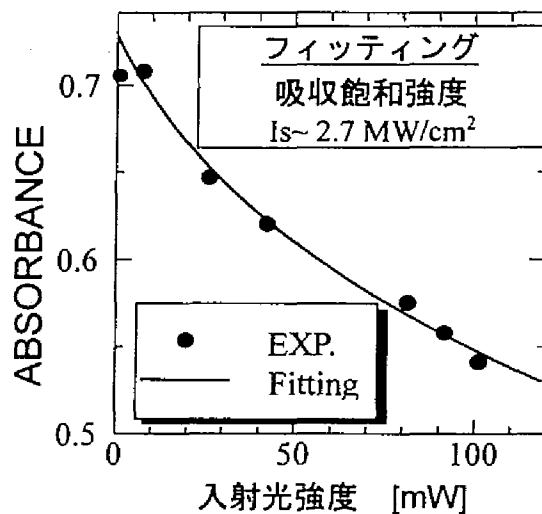


図 6.29: 吸収飽和特性測定の一例。試料は不純物添加密度が $5 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ の構造。

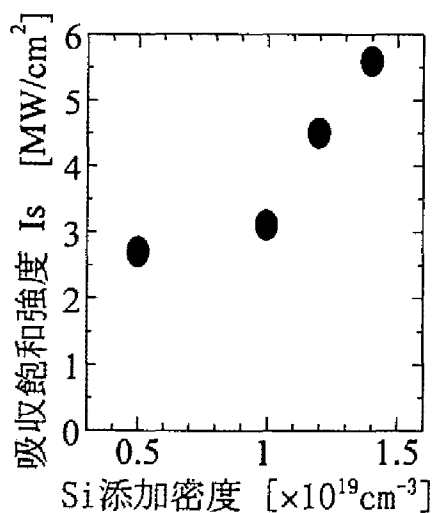


図 6.30: 吸収飽和強度の不純物添加密度依存性

密度行列理論に基づく解析によると、サブバンド間遷移の吸収飽和特性は次の式で表すことができる。²³⁾

$$I_s = \frac{n_r}{2\mu c |M_{ISB}|^2} \times \frac{(\hbar\omega - E_{ISB})^2 + (\hbar/\tau_{phase})^2}{\tau_{energy}/\tau_{phase}} \quad (6-5)$$

$$\propto \frac{1}{\tau_{energy} \times \tau_{phase}}$$

ここで、 ω は入射光の角周波数であり、これがサブバンド間エネルギーに共鳴している場合($\hbar\omega = E_{ISB}$)には吸収飽和強度がサブバンド間遷移のエネルギー緩和時間と位相緩和時間の積に逆比例するという式が得られる。よって上述の実験結果は、不純物の添加によってエネルギー緩和時間あるいは位相緩和時間が増加していることを示唆している。サブバンド間遷移のエネルギー緩和時間はB節で述べたように、ほぼLOフォノンの放出時間で決定されるため、ここで用いた程度の不純物添加密度の違いでは殆ど変化はないと考えられる。²⁰⁾ これに対して、位相緩和時間はイオン化不純物による電子の散乱および供給された電子間での電子電子散乱等の寄与がかなり大きいため、不純物添加密度の違いによって緩和時間が変化することは十分考えられる。そこで、サブバンド間の緩和時間は不純物の添加密度に関わらず変化しないものと仮定し、その値としてB節での実験によって得られた2.7~3.5psを用いることで、図6.30に示した吸収飽和強度の実験結果からサブバンド間遷移の位相緩和時間を評価した。ただしその際、式(6-5)を求める時に用いた仮定の中で、実験条件と異なる部分が存在したため、以下のような理論的な補正を行った。

(A) 式(6-5)ではサブバンド間遷移のスペクトル広がりとして位相緩和による均一広がりのみを考慮している。しかしながら、実際に用いた試料では第4章で検討したように吸収ピーク幅は井戸幅の揺らぎに起因する100meV以上の不均一広がりが見測されている。この点を考慮するため、式(6-5)の E_{ISB} を一定とせず、井戸幅の不均一性に対応した種々の E_{ISB} を持つ井戸が統計的に分布していると考え、式(6-5)を井戸幅の分布を考慮した重み関数をかけた上で E_{ISB} について積分し、平均化を行った。その際重み関数としては、赤外光吸収スペクトルを反映するように、

サブバンド間吸収エネルギーを中心とするガウス分布関数を用いた。不均一広がりのある場合の吸収飽和強度を I_s^{inhomo} とし、均一広がりのみ場合の吸収飽和強度を I_s^{homo} とし、両者の比 ($\eta = I_s^{\text{homo}} / I_s^{\text{inhomo}}$) の不均一広がり幅依存性の計算結果を図 6.31 に示す。同図から、不均一広がりが大きくなるに従って吸収飽和強度は式(6-5)による均一広がりの場合の評価値よりも増大することが分かる。これは入射光波長をサブバンド間吸収ピークに合わせた時、均一広がりの場合には式(6-5)で $\hbar\omega = E_{\text{SB}}$ が成り立つが、不均一広がりの場合にはピークエネルギー以外の E_{SB} を持つ井戸に対しては $\hbar\omega \neq E_{\text{SB}}$ となるためである。また同図から、ガウス分布の半値幅が観測されている 100 ~ 120 meV 程度の値の場合、 η が 0.6 程度になることが分かる。これは観測された吸収飽和強度を約 0.6 倍すれば均一広がりの場合の式を用いて緩和時間を評価できることを示している。

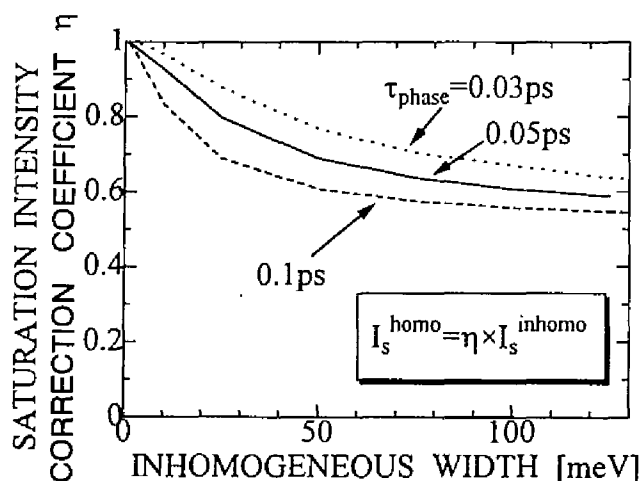


図 6.31: 均一広がりの場合の吸収飽和強度と、不均一広がりの影響を考慮した場合の吸収飽和強度比 η の不均一広がり幅依存性。

- (B) 測定に用いたサブバンド間光は幅 2ps のパルス光であり、これはサブバンド間のエネルギー緩和時間~3ps と同程度であるため、完全な定常状態の測定ではない。よって、定常状態での吸収飽和強度を示す式(6-5)をそのまま用いると問題がある。

そこでパルス光入射に対する密度行列の時間発展²⁴⁾を計算し、過渡状態における吸収飽和特性を計算した。図 6.32に入射光パルス幅が 2ps のときの吸収飽和強度とエネルギーおよび位相緩和時間の関係の計算結果を示す。同図から、 τ_{energy} がパルス幅よりも短いときには、定常状態と同様の $I_s \propto 1/(\tau_{\text{energy}} \times \tau_{\text{phase}})$ が成立しているが、 τ_{energy} がパルス幅よりも大きくなるに従って定常状態の式よりも I_s が小さくなるのが分かる。これは τ_{energy} が大きいと、短いパルス光が透過する間には励起された電子は緩和しないため吸収飽和が生じやすくなる効果を示している。

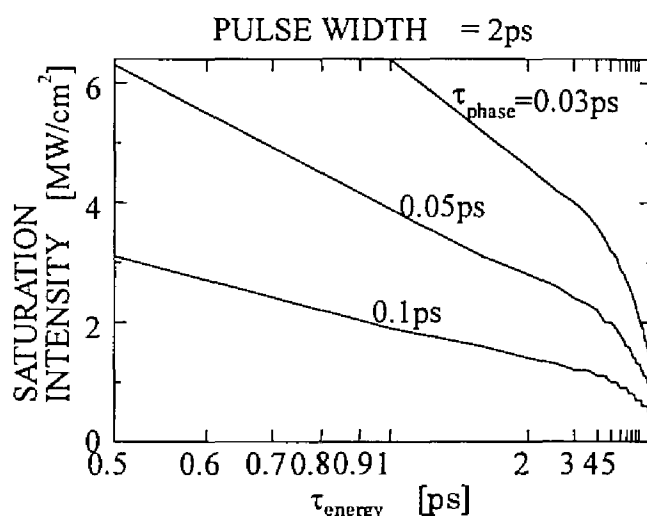


図 6.32: 入射光が短パルス(幅 2ps)であることを考慮して計算された、吸収飽和強度とエネルギーおよび位相緩和時間の関係

上記の 2 つの補正を行った上で、観測された吸収飽和強度からサブバンド間の電子分極の位相緩和時間を評価した。その際、 τ_{energy} としてポンプ&プローブ測定で得られた ~3ps を用いた。実際には、ポンプ&プローブ測定で用いた試料と、この吸収飽和強度測定で用いた試料は異なるが、これらはほぼ同等の構造を持ち、またサブバンド間吸収ピークエネルギーもほぼ等しい値であるため、この τ_{energy} を用いることは妥当といえる。また、前述のように、エネルギー緩和時間は LO フォノン放出時間によって決まるため、不純物添加密度の違いの影響は小さいものと考え、不純物添加密度に

関わらず一定値をとるものと仮定した。その評価結果を図 6.33に示す。同図から τ_{phase} は 0.04~0.09 ps 程度の値をとり、不純物添加密度が高いほど位相緩和は速くなるとの結果が得られた。これは不純物添加密度が高いほど、イオン化不純物散乱や電子電子散乱が増加するためと考えられるが、詳細は次の理論計算との比較において考察する。また、この実験的検討で得られた位相緩和時間 0.04~0.09 ps は、本節のはじめに述べた図 6.27の変調特性の位相緩和時間に対する依存性の計算において、仮定した緩和時間とほぼ同等である。そして、図 6.27の結果から位相緩和時間が 0.1ps 程度と長い場合には、強度 1 MW/cm²の制御光で 300cm⁻¹のバンド間光の吸収係数変化が生じていることが分かる。この吸収係数変化は、100 μm 程度の導波路型の変調デバイスを形成することで、100%の変調をかけ得るような値である。よって、本構造におけるサブバンド間遷移の位相緩和時間は、提唱している変調デバイスへの応用を達成可能な特性であることが分かった。

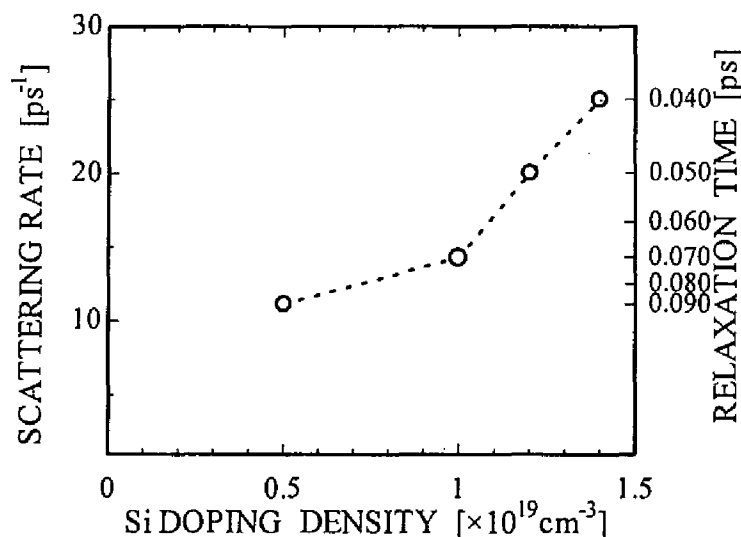


図 6.33: 位相緩和時間の不純物添加密度依存性

C-2 理論的検討

C-1 における位相緩和時間の実験的検討の結果をより一般的に評価するため、理論的検討を行って実験結果と比較した。位相緩和時間を決定する主な要素としてはLOフォノン散乱、LAフォノン散乱、イオン化不純物散乱、電子電子散乱等が考えられるが、^{5,18)} 前二つのフォノン散乱はその散乱時間がサブピコ秒程度と理論的に予測されているのに対して、^{5,18)} 後二つのクーロン散乱はイオン化不純物および電子の密度によっては数十フェムト秒程度にもなるとの計算結果もある。²⁵⁻²⁷⁾ 特に、本研究で用いた量子井戸構造では、サブバンド間遷移を用いるために n 型不純物である Si を $1 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ 程度も添加しており、後者のクーロン散乱の影響が非常に大きいと予想される。そこで、イオン化不純物散乱および電子電子散乱時間について理論計算を行うことで位相緩和時間の評価を試みた。

C-2-1 計算方法

電子分極の位相が緩和することは電子分極を形成する二つの電子状態と光との結合が失われることである。サブバンド間遷移の場合では、サブバンド間光によって第一サブバンドの波数 k の電子が第二サブバンドの波数 $k+q$ (q : サブバンド間光の波数) の状態とコヒーレントに結合して電子分極が生じるので、第1サブバンドの電子の波数が k から変化する、あるいは第2サブバンドの電子の波数が $k+q$ から変えると光との運動量保存則が成立しなくなって、光と電子の結合は失われる。また他の波数状態の電子が、光と結合している電子状態のどちらかに遷移して入ってくると、波数 k と $k+q$ の電子状態の結合におけるコヒーレンシー(coherency)が失われ、光と電子の結合が失われる。よって、電子がある波数状態から散乱によって他のすべての波数状態に遷移して、元の状態から出ていく割合と、他のすべての波数状態にある電子が散乱によって注目している波数状態に入ってくる割合の和が位相緩和時間の逆数に対応すると考えられる。ここでは簡単のためサブバンド間光の強度が小さい状態を仮定し、すべての電子が第1サブバンドに存在する場合について上記の散乱確率を計算した。散乱確率はフェルミの黄金率を用いることで、イオン化不純物散乱確率 Γ_{ei} については、

$$\Gamma_{out}^{\vec{k}} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_q \left| \langle \vec{k} + \vec{q} | v(\vec{q}, 0) | \vec{k} \rangle \right|^2 \times [1 - f(\vec{k} + \vec{q})] \times \delta(E_{\vec{k} + \vec{q}} - E_{\vec{k}}) \quad (6-6)$$

$$\Gamma_{in}^{\vec{k}} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_q \left| \langle \vec{k} | v(\vec{q}, 0) | \vec{k} + \vec{q} \rangle \right|^2 \times f(\vec{k} + \vec{q}) \times \delta(E_{\vec{k} + \vec{q}} - E_{\vec{k}}) \quad (6-7)$$

と表すことができ、電子電子散乱確率 Γ_{ee} については

$$\begin{aligned} \Gamma_{out}^{\vec{k}_1} = & \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\vec{k}_2, \vec{k}_3, \vec{k}_4} 2 \times \left| \langle \vec{k}_2, \vec{k}_4 | v(\vec{k}_1 - \vec{k}_2, E_{\vec{k}_1} - E_{\vec{k}_2}) | \vec{k}_1, \vec{k}_3 \rangle \right|^2 \\ & \times [1 - f(\vec{k}_2)] \times f(\vec{k}_3) \times [1 - f(\vec{k}_4)] \\ & \times \delta_{\vec{k}_1 + \vec{k}_3, \vec{k}_2 + \vec{k}_4} \times \delta(E_{\vec{k}_2} + E_{\vec{k}_4} - E_{\vec{k}_1} - E_{\vec{k}_3}) \end{aligned} \quad (6-8)$$

$$\begin{aligned} \Gamma_{in}^{\vec{k}_1} = & \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\vec{k}_2, \vec{k}_3, \vec{k}_4} 2 \times \left| \langle \vec{k}_1, \vec{k}_3 | v(\vec{k}_1 - \vec{k}_2, E_{\vec{k}_1} - E_{\vec{k}_2}) | \vec{k}_2, \vec{k}_4 \rangle \right|^2 \\ & \times f(\vec{k}_2) \times [1 - f(\vec{k}_3)] \times f(\vec{k}_4) \\ & \times \delta_{\vec{k}_1 + \vec{k}_3, \vec{k}_2 + \vec{k}_4} \times \delta(E_{\vec{k}_2} + E_{\vec{k}_4} - E_{\vec{k}_1} - E_{\vec{k}_3}) \end{aligned} \quad (6-9)$$

と表すことができる。²⁶⁾ここで $f(\mathbf{k})$ はフェルミディラック分布で表される波数 \mathbf{k} の状態の占有率であり、 $v(\mathbf{q}, \hbar\omega)$ は電子による動的なスクリーニング効果を乱数位相近似(Random Phase Approximation: RPA)によって考慮したクーロン・ポテンシャルであり、次式で表される。²⁸⁾

$$v(\vec{q}, \hbar\omega) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_s} \frac{2\pi e^2}{q} \frac{1}{1 + \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_s} \frac{2\pi e^2}{q} \Pi(\vec{q}, \omega) \times \chi_q} \quad (6-10)$$

ここで、 $\Pi(\mathbf{q}, \hbar\omega)$ はRPAによるバンド内電子による分極関数であり

$$\Pi(\vec{q}, \hbar\omega) = \lim_{\alpha \rightarrow +0} 2 \times \sum_{\vec{k}} \frac{f(\vec{k}) - f(\vec{k} + \vec{q})}{E_{\vec{k} + \vec{q}} - E_{\vec{k}} - \hbar\omega + i\hbar\alpha} \quad (6-11)$$

で表され、 χ_q はサブバンドの波動関数を考慮した形状因子であり、

$$\chi_q = \int |\varphi(z)|^2 \times |\varphi(z')|^2 \times \exp[-q|z - z'|] dz dz' \quad (6-12)$$

で表される。ここで $\varphi(z)$ は電子の波動関数である。

C-2-2 計算結果および実験結果との比較

実験で用いた $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ (10ML) / AlAs (16ML) と同じ構造を仮定し、上述の式を用いて散乱確率を計算した。ただし、添加した不純物は 100%活性化するとし、さらに第5章の結果をもとに活性化した不純物の 30%が井戸層の第1サブバンドに残ると仮定して、井戸層に分布している電子の影響のみを考慮して散乱確率を計算した。その結果を図 6.34 に示す。同図から、イオン化不純物散乱が電子電子散乱に比べて 100 倍以上も速いことが分かる。つまり、位相緩和はほとんどイオン化不純物散乱によって決まっており、不純物添加密度が $1 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ 程度のときの位相緩和時間は 5~6fs となっている。これは C-1 で実験的に得られた 40~90fs の位相緩和時間と比較して 10 倍以上短く、実験結果と計算結果はまったく一致しないことが判明した。

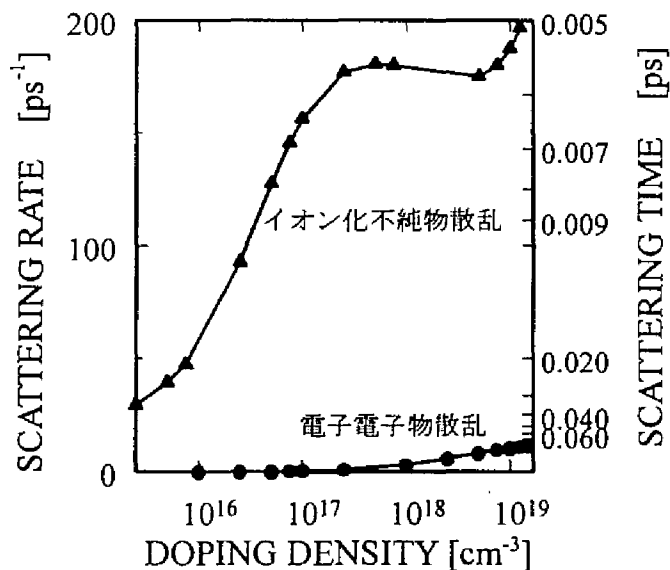


図 6.34: 理論計算によって得られたイオン化不純物散乱および電子電子散乱による位相緩和割合(時間)

ここで、著者はこの不一致の原因が添加した電子の 70%を占める障壁層の X 谷サブバンドに漏れ出ている電子の効果を無視したことによって生じたのではないかと考

えた。通常のクーロン散乱の計算では、本研究で用いたような特殊な構造は取り扱っておらず、X 谷と Γ 谷の両方に電子が分布する場合の散乱確率の計算例は(著者の知る限り)見られない。そこで、この効果を取り入れるため、まず式(6-11)の分極関数を計算する際に、 Γ 谷サブバンドのみでなく、 X_p 谷および X_s 谷のサブバンドについても有効質量による E_k および $f(k)$ の違いも考慮してバンド内の和をとることで、X 谷電子の影響も取り入れたスクリーニング効果を計算した。また、 Γ 谷と X 谷との間での電子の遷移は運動量の大きな変化を伴うので無視できるほど小さいものと考えられるが、電子電子散乱においては Γ 谷の電子がX谷の電子と衝突してそれぞれ Γ 谷およびX谷の別の状態に散乱される確率は無視できないものと考えられる。そこで、式(6-8)および式(6-9)の散乱粒子である k_3, k_4 についての和をとる際に、 Γ 谷の電子のみでなく X_p 谷および X_s 谷の電子も取り入れた計算を行った。

図 6.35に X 谷電子の影響を考慮した場合の、イオン化不純物および電子電子散乱確率の不純物添加密度依存性を、X 谷を考慮しない場合のそれと対比させて示す。同図から不純物添加密度が $1 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ 程度するとき、X 谷電子の影響を考慮するとイオン化不純物散乱確率は 1/10 程度に小さくなるのに対して、電子電子散乱確率は 2 倍程度に増加していることが分かる。前者は X 谷電子によるスクリーニング効果が大きいいため、クーロン相互作用が抑制された結果と考えられる。スクリーニング効果を決める式(6-11)の分極関数を絶対 0 度で評価すると、これはフェルミ面の状態密度すなわち有効質量に比例する。²⁹⁾ よって、第 5 章で述べたように有効質量の大きい X 谷の電子($m_{lxs} \sim 0.63 m_0$, $m_{lxp} \sim 0.25 m_0$)は Γ 谷の電子($m_{l\Gamma} \sim 0.078 m_0$)と比較して、電子 1 つあたりで 8 倍(X_s 谷)あるいは 4 倍(X_p 谷)も大きなスクリーニング効果を持つ。有限の温度でも同様の傾向はあると考えられ、加えて X 谷電子は Γ 谷電子の 2 倍以上の数であるため、X 谷を考慮した場合のスクリーニング効果は、X 谷を考慮しない場合と比較して 10 倍程度大きくなり、イオン化不純物散乱確率が 1/10 程度に低下したといえる。また、後者はスクリーニング効果によるクーロン相互作用の抑制の影響以上に、X 谷電子による Γ 谷電子の散乱の影響が大きいいため、結果的に電子電子散乱が 2 倍程度に増大したのと考えられる。電子電子散乱の確率も状態密度に比例するので、X 谷

電子による散乱は Γ 谷電子による散乱と比較して、8 倍(X_s 谷)あるいは 4 倍(X_p 谷)も大きい。さらに、 X 谷サブバンドの電子数が大きいこと等を考慮すると、上記の結果は説明可能と考えられる。

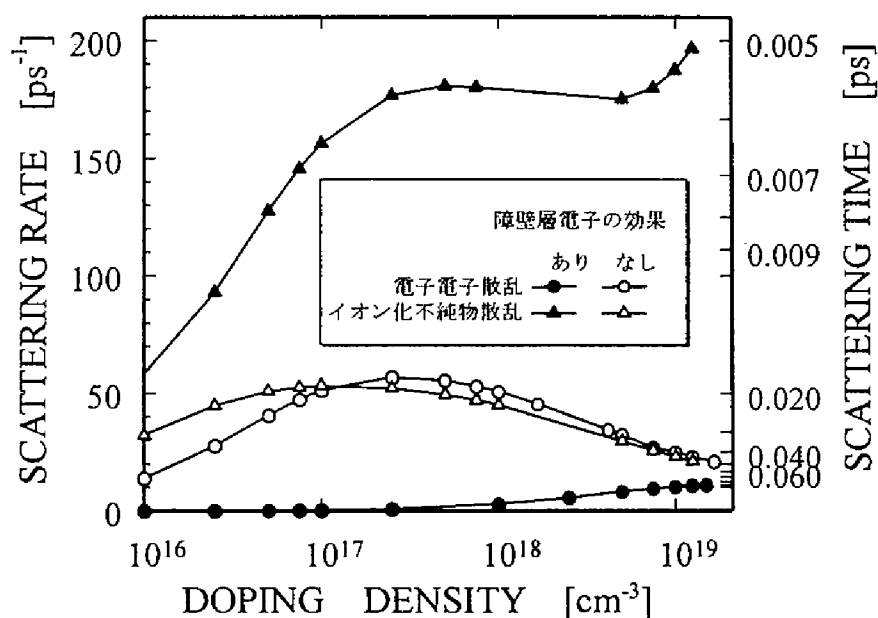


図 6.35: イオン化不純物散乱および電子電子散乱の計算結果。障壁層(X 谷)の電子の影響を考慮した場合としない場合の比較。

また、図 6.35の結果を用いてイオン化不純物散乱割合と電子電子散乱割合との和から計算した位相緩和時間の理論値を、実験結果と対比させて図 6.36に示す。同図から、 X 谷の電子の影響を考慮しない場合には位相緩和時間の理論値は実験結果の 10 倍以上でまったく一致しないのに対して、 X 谷の電子の影響を考慮した場合には両者は比較的よく一致していることが分かる。よって、クーロン散乱による位相緩和過程には、サブバンド間遷移に直接寄与する Γ 谷の電子だけでなく、 X 谷に漏れ出たサブバンド間遷移に直接は関与しない電子の影響も非常に大きいことが分かった。しかしながら障壁層電子の影響を考慮した場合でも、図 6.36の位相緩和時間から分かるように、実験結果が 40 ~ 90 fs であるのに対して計算結果は 20 ~ 25 fs と 2 倍以上緩和が速い

という定量的な違いだけでなく、不純物添加密度が増加するに従って、実験的には位相緩和は速くなるのに対して、計算結果では遅くなるという定性的な違いも存在する。これについては、乱数位相近似(RPA)を行う際に X 谷サブバンドの電子が Γ 谷の電子と空間的に離れた場所に存在していることの影響を完全には考慮できていないためにスクリーニング効果を過大に評価している可能性や、計算では第 1 サブバンドの電子の散乱のみを考慮したが実験では吸収飽和が生じるほどのサブバンド間光を入射しているため、第 2 サブバンドにおける電子の散乱を考慮する必要がある可能性等が考えられる。また、実験についても、より注意深い再測定を行う必要があると考えられる。今後、詳しい検討を行っていく予定である。

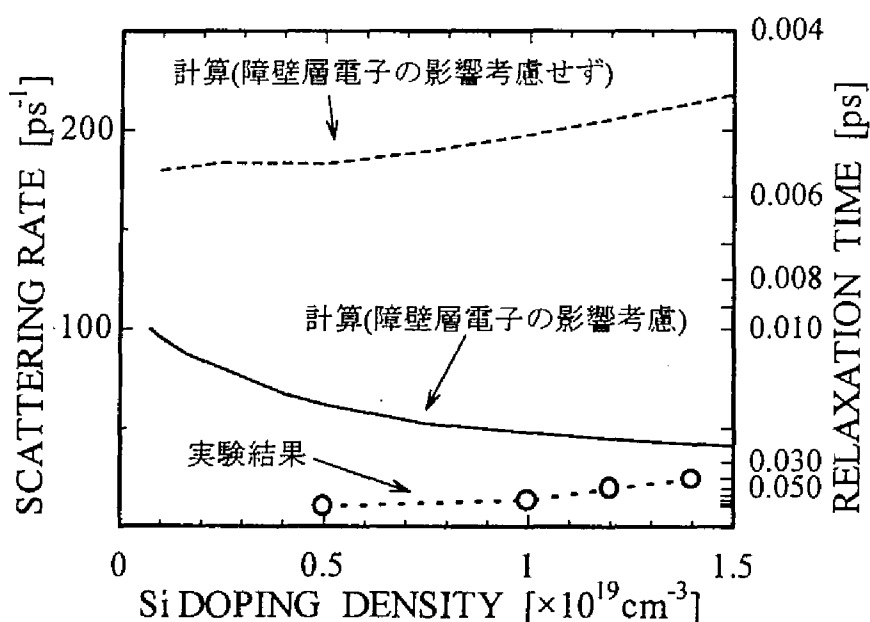


図 6.36: 位相緩和時間の理論値と実験値の比較

C-3 まとめ

光非線型効果の大きさを決める重要な特性であるサブバンド間遷移の電子分極の緩和時間について、定常的な吸収飽和特性と過渡的な吸収飽和特性の両方を用いる独自の方法で検討を行い、位相緩和時間 40~90fs との値を得た。また、この実験結果を

理論計算と比較検討することで、障壁層の電子のクーロン遮蔽効果が井戸層の電子の位相緩和抑制に強い影響を及ぼしており、特にイオン化不純物散乱は障壁層電子の遮蔽効果によって散乱確率が 1/10 程度と大きく抑制されていることが分かった。

D まとめ

本章では、第 4 章で達成した短波長サブバンド間遷移による電子励起の緩和特性について、エネルギー緩和時間と位相緩和時間の両者について検討した。まずサブバンド間吸収飽和の過渡特性をポンプ&プローブ法によって測定し、時間分解能として 100fs 程度の高い精度でサブバンド間励起電子の緩和時間を評価した。2.5 μm という短い遷移波長のサブバンド間遷移に対して、エネルギー緩和時間の測定を行い、2.7~3.5 ps という値を得た。これは、2.5 μm という短波長なサブバンド間遷移において初めて実験的に示された値であり、短波長化サブバンド間遷移の超高速デバイスへの応用可能性を示すことができた。

また、光非線型効果の大きさを決める重要な特性であるサブバンド間遷移の電子分極の緩和時間について、定常的な吸収飽和特性と過渡的な吸収飽和特性の両方を用いる独自の方法で検討を行った。短波長化サブバンド間遷移における位相緩和時間が 40~90fs との評価結果を得たことで、本構造が位相緩和時間の観点からも提唱している光-光変調への応用に十分な特性を持つことを示し得た。また実験結果を理論計算と比較検討することにより、障壁層の電子のクーロン遮蔽効果が井戸層の電子の位相緩和抑制に強い影響をもち、特にイオン化不純物散乱確率は障壁層電子によって 1/10 程度まで強く抑制されていることを明らかにした。将来的には、この効果を用いて光非線型効果の大きさを制御するなどの興味深い応用が考えられる。

参考文献

- ¹ 末松安晴: 半導体レーザーと光集積回路 (オーム社、東京、1984), p. 142.
- ² K. Turner, L. Rota, R. A. Taylor, J. F. Ryan, C. T. Foxton: Appl. Phys. Lett. 66, 3188 (1995).
- ³ B. K. Ridley: Phys. Rev. B39, 5282 (1989).
- ⁴ S. Rudin, T. L. Reinecke: Phys. Rev. B41, 7713 (1990).
- ⁵ H. Rücker, E. Molinari, P. Lugli: Phys. Rev. B45, 6747 (1992).
- ⁶ Ulrich Bockelmann: *Intersubband Transitions in Quantum Wells*, (Plenum Press, New York and London, 1992), p. 105.
- ⁷ A. Seilmeir, H.J.Hübner, G. Abstreiter, G. Weimann, and W. Schlapp: Phys. Rev. B59, 1345 (1987).
- ⁸ F.H. Julien, J.-M. Lourtioz, N. Herschkorn, D. Delacourt, J. P. Pocholle, M. Papuchon, R. Planel, and G. Le Roux: Appl. Phys. Lett. 53, 116 (1988).
- ⁹ J. Faist, F. Cappaso, C. Sirtori, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, S. N. G. Chu and A. Y. Cho, Appl. Phys. Lett. 63, 1354 (1993).
- ¹⁰ D. Y. Oberli, D. R. Wake, M. V. Klein, J. Klem, T. Henderson, and H. Morkoc: Phys. Rev. Lett. 59, 696 (1987).
- ¹¹ U. Plöderer, T. Dahinten, A. Seilmeier, and G. Weimann: *Intersubband Transitions in Quantum Wells*, (Plenum Press, New York, 1992), p. 309.
- ¹² T. A. Gardiner, Ju. V. Vandyshv, G. W. Wicks, P. M. Fauchet: QELS'97, QthA2,137.
- ¹³ J. L. Educatto and J. P. Leburton: Phys. Rev. B 49, 2177 (1994).
- ¹⁴ A. Seilmeir, U. Ploedereder, J. Baier, G. Weimann: *Quantum Well Intersubband Transition Physics and Devices*, (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht / Boston / London, 1994), p. 421.
- ¹⁵ 小林孝嘉: 物理学最前線第 30 巻 調短光パルスレーザとその物理学への応用、大槻義彦 編、(共立出版社、東京、1993)
- ¹⁶ W. Z. Lin, R. W. Schoenlein, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen: IEEE J. of Quantum Electronics, 24, 267 (1988)
- ¹⁷ R. Ferreira, G. Bastard: Phys. Rev. B 40, 1074 (1989).
- ¹⁸ W. W. Bewley, C.L. Felix, J. J. Plombon, M. S. Sherwin, M. Sundaram, P. F. Hopkins, and A. C. Gossard: Phys. Rev. B 48, 2376 (1993)
- ¹⁹ M. A. Osman, and D. K. Ferry: Phys. Rev. B 36, 6018 (1987).

- ²¹ E. Corbin, M. J. Shaw, K. B. Wong, and M. Jaros: *Quantum Well Intersubband Transition Physics and Devices*, (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht / Boston / London, 1994), p. 477.
- ²² S. Noda, T. Uemura, T. Yamashita, and A. Sasaki: *IEEE J. Quantum Electron.* **28**, 493 (1992).
- ²³ E. J. Roan, and S. L. Chuan: *J. Appl. Phys.* **69**, 3249 (1990).
- ²⁴ S. E. Harris, J. E. Field, and A. Imamoglu: *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1107 (1990)
- ²⁵ G. F. Giuliani and J. J. Quinn: *Phys. Rev. B* **26**, 4421 (1982).
- ²⁶ R. Binder, D. Scott, A. E. Paul, M. Lindberg, K. Henneberger, and S. W. Koch: *Phys. Rev. B* **45**, 1107 (1992).
- ²⁷ S. K. Lyo: *Phys. Rev. B* **43**, 7091 (1991)
- ²⁸ P. Sotirelis, P. von Allmen, and K. Hess: *Phys. Rev. B* **47**, 12744 (1993)
- ²⁹ T. Ando: *J. of Pys. Soc. Jpn.* **51**, 3900 (1982).

第7章 結論

本研究では、半導体量子井戸中のサブバンド間遷移が本質的にピコ秒程度という非常に短い緩和時間を持ち得ることに着目し、光通信速度の向上に貢献すべく、このサブバンド間遷移と通常のバンド間遷移の非線形な相互作用を利用してピコ秒程度の超高速光制御光変調を実現することを目標に研究を行った。従来の AlGaAs 系材料における長波長サブバンド間遷移を用いた変調原理の実証と、より実用性を高めるための新材料系の導入によるサブバンド間遷移波長の短波長化に取り組んだ結果、(1)長波長サブバンド間遷移において 3ps 程度の超高速変調が可能であることを間接的に示し、さらに(2)サブバンド間遷移波長を半導体レーザが使用可能な $1.9\mu\text{m}$ まで短波長化し、また(3)その緩和時間が短波長化した場合でも 3ps 程度と非常に速いことを実験的に示すことに成功した。その概要は以下の通りである。

A サブバンド間遷移を用いた超高速光制御光変調の自由電子レーザによる検証

本研究ではまず、従来の長波長サブバンド間遷移を用いて、光制御光変調の原理実証を行った。変調動作を確認する実験を行うため、従来の GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As 量子井戸を用いた変調デバイス(サブバンド間遷移波長 $\sim 10.6\mu\text{m}$)を作成し、制御光源として 3ps 程度の極短パルス光を発生可能な自由電子レーザを使用して実験を行った。制御光波長をサブバンド間吸収の存在する領域に設定したときのみに制御光の照射に伴う信号光の透過率の変化が観測されることを確認し、サブバンド間-バンド間遷移の結合によって変調が生じることを実証した。ここでは、測定系の時間分解能の限界から直接的にピコ秒レベルでの変調の観測はできなかったが、制御光強度がある程度以上になると変調度が飽和することから、実際には制御光幅(3ps)程度の高速な変調であることを初めて(間接的ではあるが)示し得た。

B サブバンド間遷移短波長化のための材料選択・構造設計および成長条件の検討

つぎに本研究ではサブバンド間遷移の一般的な応用範囲を広げるため、遷移波長の短波長化に取り組み、半導体レーザの利用可能な $2\mu\text{m}$ 以下の実現を目指して短波長化の方法を検討した。サブバンド間遷移短波長化には伝導帯バンドオフセットの大きな材料系が必要であり、デバイス応用の観点からは多重量子井戸構造が形成可能であることも重要であることを考慮し、基板も含めて材料系を詳しく検討することにより、GaAs 基板上の InGaAs/AlAs という新たな独自の系を選択した。そして、詳細な理論計算により具体的な構造を検討し、 $2\mu\text{m}$ 以下までの短波長化には井戸層の幅 9ML 程度の量子井戸構造が必要であることを予測した。また、この材料系の作製はほとんど検討されたことがなく、歪みの点から見ても成長条件の問題から見ても整合性の悪い材料系であったため、成長方法および成長条件を詳しく検討し、MBE 法を用いて基板温度 $400\sim 520^\circ\text{C}$ において InGaAs および AlAs の両層を連続して積層する方法が適切であること、および高い V/III 比が必要であること等の条件を明らかにした。

C GaAs 基板上 InGaAs/AlAs 量子井戸によるサブバンド間遷移の短波長化

B の結果をもとに実際に種々の構造の量子井戸を作製し、サブバンド間吸収の短波長化を実験的に追求した。井戸層の幅 $7\sim 13\text{ML}$ の n 型不純物(Si)添加 InGaAs/AlAs 多重量子井戸試料を作製し、赤外光吸収スペクトル測定を行うことでサブバンド間遷移の特性を調べた。最も幅の広い、井戸幅 13ML の試料では波長 $3.1\mu\text{m}$ のサブバンド間遷移が観測され、さらに井戸幅を減少させることで遷移波長が短波長化する様子が観測された。最も幅の狭い井戸幅 7ML の試料においては、サブバンド間遷移波長 $1.90\mu\text{m}$ が観測され、半導体モードロックレーザを用いることの可能な領域までの短波長化を実現できた。これにより、サブバンド間遷移のデバイス応用をより容易にするという大きな成果を得た。また、サブバンド間吸収スペクトルの形状について検討したところ、すべての試料において 100meV 以上と広いスペクトル幅が観測された。

これは従来の長波長サブバンド間遷移のそれ（最大でも 50meV 程度）と比較して非常に大きく、その原因を解明しておく必要があると考えられた。そこで、詳しい理論的検討を行い、これが通常の成長法上不可避な 1ML 程度の井戸幅の揺らぎに起因していることを明らかにした。

D 短波長化サブバンド間遷移の吸収強度の増大化

さらに C の短波長化サブバンド間遷移のデバイス応用には、十分な光吸収が必要であるとの観点から吸収強度についての検討を行った。まずサブバンド間吸収の積分量の試料構造依存性を調べたところ、井戸幅の減少に伴って吸収強度が急速に減少することが判明した。これはサブバンド間遷移波長を短波長化するほどデバイス応用が困難となることを意味しているため、これを抑制することを次の研究課題とした。詳しい理論的検討を行ったところ、井戸幅の減少に伴って(a)サブバンド間遷移の双極子モーメントが減少することに加えて、(b)井戸層の第一サブバンドに存在して吸収に寄与すべき電子の大部分が AlAs 障壁層の X 端に漏出することにより吸収量の減少が生じることが分かった。前者の双極子モーメントの低下は理論的に回避不能なため、井戸層の第一サブバンドの電子を増大させる方法を探索した。理論的検討をもとに種々の方法を立案して実験した結果、成長温度の低減、井戸層の In 組成の増加、および障壁層幅の低減により電子の障壁層への漏出を抑制する手法が有効であることを発見し、吸収強度を最適化前の 12 倍にまで増加させることに成功した。

E 短波長化サブバンド間遷移における電子励起の超高速緩和特性

最後に本研究では、B~D で達成した短波長サブバンド間遷移の緩和特性について検討した。これは、超高速光制御光変調を含む超高速デバイスへの応用を考える上で非常に重要な特性であるが、これまで短波長化サブバンド間遷移の緩和時間を実際に測定した報告はなかった。光パラメトリック増幅システムを光源に用いて時間分解能が 100fs 程度の緩和時間測定系を構築し、サブバンド間遷移波長が 2.5 μm の試料に対して測定を行った結果、緩和時間 2.7~3.5 ps 程度という値を得た。これは、2.5 μm という短波長なサブバンド間遷移において初めて明らかになった値であり、通常のサブ

バンド間遷移の緩和時間の測定値(1~2ps 程度)と比較して、緩和時間がそれほど増大していないことを示し得た意義深い結果である。この結果から、短波長化サブバンド間遷移を用いた光制御光変調では 3ps 程度の超高速の応答が可能であることが分かった。

さらに、光非線型効果の大きさを決める重要な特性であるサブバンド間遷移の電子分極の緩和時間について吸収飽和の定常状態と過渡状態の両方の特性から評価する独自の方法で検討を行った。その結果、短波長化サブバンド間遷移における位相緩和時間が 0.04 ~ 0.09 ps との値を得ることに成功し、提唱している超高速変調への応用に十分な特性を持つことを示し得た。また、この実験結果を理論計算と比較することにより、障壁層に漏れ出た電子のクーロン遮蔽効果が井戸層の電子分極の位相緩和抑制に強い影響を及ぼすこと等を明らかにした。将来的には、この効果を用いて光非線型効果の大きさを制御するなどの興味深い応用が考えられる。

F まとめおよび今後の課題

以上、本研究ではサブバンド間遷移を用いたピコ秒変調を実証し、またサブバンド間遷移を短波長化することで、その応用性を高めることに成功した。今後の課題としては、以下のような様々な展開が考えられる。

- (A) 本研究で得られた短波長化サブバンド間遷移を用いて半導体レーザーを制御光に用いた光—光変調を実現する。将来的には、変調デバイスとレーザをハイブリッドに集積したデバイスの実現も期待される。また、サブバンド間遷移レーザを制御光に用いることができれば、モノリシックな集積デバイスの実現も可能と考えられる。
- (B) 本研究で検討した量子井戸構造について、基板や成長条件等をより深く探求することで、更なる短波長化を実現する。特に、最近報告されている基板融着技術を用いて作製できる歪み緩和層の利用や、界面活性剤の導入による InGaAs の 3 次元成長抑制等の技術を用いた検討を行うことが考えられる。
- (C) GaN 等の新しいバンドオフセットの大きい材料系を用いて、新たな観点から短波長化を探求する。GaN と AlN ではバンドオフセットが 2.1eV との報告もあり、

かなりの短波長化が期待できる。今後の成長技術の発展次第では、分子層単位の GaN/AlN 量子井戸の作製も可能になり、窒化物材料系を用いたサブバンド間遷移デバイスの開発も考えられる。また、砒素系半導体よりも硬い窒化物半導体では LO フォノンと電子の結合が強いため、サブバンド間のエネルギー緩和がより高速になるとも予想されており、超高速デバイスへの応用もかなり期待できる。

最後に、本研究がサブバンド間遷移の各種デバイスへの応用の促進に寄与し、また超高速光通信等の技術を通じて社会に貢献し得ることを願いつつ、本論文の結びとしたい。

謝辞

本研究は京都大学大学院工学研究科電子物性工学教室 藤田茂夫教授のご指導を賜ることで、ここにまとめることができたものです。先生の配慮に満ちた御支援があってこそ、本研究をここまで発展させることができたものと心より感謝しております。

京都大学大学院工学研究科電子物性工学教室 松波弘之教授、松重和美教授には、本論文の執筆にあたり、貴重な御指導を賜りました。深い背景に基づく助言および厳しい意見は本論文の作成においてまことに参考になりました。心より感謝いたします。

本研究を進めるにあたり、佐々木昭夫京都大学名誉教授には貴重な御討論ならびに親切なる御指導を頂きました。また雑談等を通して先生の人格に触れることができたことは著者にとっては非常に大きな経験であり、研究者としての生き方はもちろんのこと、それ以上に大きなものを学ぶ機会を与えられました。心から感謝致します。

直接の御指導を頂きました野田進助教授には、度重なる貴重な御討論、御助言を頂きました。先生の常に新しいものを探求する姿勢は、著者にとって非常に刺激的であり、常に活力を与えられました。そして先生の時には暖かく、時には厳しい指導により、本研究は完成することが出来たものです。心より感謝致します。豊橋技科大学 若原昭浩助教授には実験を進める上で、過去の深い経験に基づく数多くの有益な御助言ならびに御討論を頂きました。理論に傾きがちな著者にとって、先生の示して下さる視点は新鮮であり、非常に参考になりました。心より感謝致します。石橋豊次助手には研究を進めるにあたり、多くの便宜をはかって頂きました。先生の細かな支援があつてはじめて研究に没頭することができたものと心より感謝しております。

藤田静雄助教授、川上養一助教授には研究を進める上で、多大な便宜を図って頂き、少ない実験空間およびレーザー使用可能時間のまことに貴重な一部を本研究のためにお貸しくださいました。誠に感謝しております。

須田淳助手には研究を進める上で適切な助言を頂きました。また、須田氏と川西氏には本論文を作成する上で、種々の助言を頂きました。感謝します。また、須田氏、川西氏、宇野和行氏、鍋谷暢一氏、室本純孝氏、柴田公隆氏、前堀健太氏、大谷昌輝氏、長谷川利通氏および平野晃太郎氏には公私にわたり、さまざまな御指導、御助言

を頂きました。誠に感謝しております。鳥取大学助手 阿部友紀氏とはサブバンド間遷移短波長化の研究を共に行いました。氏の協力に対し、深く感謝の意を表します。

光量子研究室のみなさまには、研究の遂行にあたり種々の協力と支援を頂きました。すでに卒業された方も含め、すべての方々に対して、ここに深く感謝します。徳田崇氏とは物理理論について様々な議論を行い、物理への理解を深めることが出来ました。山本宗継氏には、計算環境の整備において協力を頂きました。また種々の計算プログラムの作成にあたり、事細かな助言を頂きました。今田昌宏氏には、測定系の制御プログラムの作成において、多大な援助を頂きました。また、電子ビーム描画装置の使用にあたり、種々の指導を頂きました。古川雄三氏は電子顕微鏡による試料観察において便宜を図って下さいました。五十嵐俊昭氏とはレーザシステムの立ち上げおよびポンプ&プローブ測定を共同で行いました。友田勝寛氏とはポンプ&プローブ測定を共に行いました。共同で研究を行うことで互いに刺激をうけ、新たな視点を見つけることが出来たと思います。

藤田研究室のみなさまは、前にも述べましたが、少ない実験空間およびレーザー使用可能時間のまことに貴重な一部を本研究のためにお貸し下さいました。その寛大な心に対し、ここに深く感謝します。また成川幸男氏とはレーザシステムの立ち上げ、メンテナンスを共同で行って来ました。氏の尽力に敬意を表します。

松波研究室の皆様には実験装置の借用などの御配慮を頂きました。ここに深く御礼申し上げます。また、山田研究室の皆様にも実験装置の借用の上で種々の御配慮を頂きました。ここに深く御礼申し上げます。

本研究の一部は京都大学ベンチャービジネスラボのレーザー装置を用いて行われました。松重施設長はじめ運営に携わっているの方々に対して、ここに深く感謝します。

著者は平成9年4月より日本学術振興会から特別研究員(DC)として援助を受けております。ここに謹んで感謝します。

最後に、著者に対し様々な精神的および経済的支援を与えてくれた家族、そして友人たちに心からの感謝の意を示して謝辞の結びとします。

研究業績

発表論文

1. S. Noda, M. Ohya, Y. Muromoto, **T. Asano**, and A. Sasaki:
“Enhanced intersubband-resonant light modulation by intersubband-resonant light in selectively n-doped quantum wells.”
IEEE J. of Quantum Electronics, Vol 31, pp. 1683-1690, 1995.
2. S. Noda, **T. Asano**, and A. Sasaki:
“Ultrafast Interband-Resonant Light Modulation By Intersubband-Resonant light in Quantum Well Structure.”
OPTOELECTRONICS, Vol. 10, pp. 515-530, 1995.
3. **T. Asano**, S. Noda, T. Abe, and A. Sasaki:
“Nearinfrared intersubband transitions in InGaAs/AlAs quantum wells on GaAs substrate.”
Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 35, pp. 1285-1291, 1996.
4. **T. Asano**, S. Noda, T. Abe, and A. Sasaki:
“Investigation of short wavelength intersubband transitions in InGaAs/AlAs quantum wells on GaAs substrate.”
Journal of Appl. Phys., Vol. 82, pp. 3385-3391, 1997.
5. **T. Asano**, S. Noda, T. Abe, and A. Sasaki:
Journal of Physica E 1998.
“Absorption Magnitude and Phase Relaxation Time in Short Wavelength Intersubband Transition in InGaAs/AlAs Quantum Wells on a GaAs Substrate”
<<to be published >>
6. **T. Asano**, S. Noda, and A. Sasaki:
Phys. Rev. B.
“Relaxation Time of Short Wavelength Intersubband Transition in InGaAs/AlAs Quantum Wells.”
<<to be submitted >>
7. **T. Asano**, S. Noda, and A. Sasaki:
“Enhancement of Absorption Magnitude of Short Wavelength Intersubband Transition in InGaAs/AlAs Quantum Wells.”
Jpn. J. Appl. Phys.
<< to be published >>
8. T. Suzuki, T. Mituyu, K. Nishi, H. Ohyama, T. Tomimasu, S. Noda, **T. Asano**, and A. Sasaki: Appl. Phys. Lett., Vol 69, pp. 4136-4138, 1996.
“Observation of ultrafast all-optical modulation based on intersubband transition in n-doped quantum wells by using free electron laser.”
9. **T. Asano**, S. Noda, and A. Sasaki:
“Pump & Probe Measurement of Relaxation Times of Short Wavelength Intersubband Transitions.”
<< in preparation >>

国際学会発表

1. S. Noda, **T. Asano**, and A. Sasaki:
"AlAs/InGaAs/AlAs quantum wells on GaAs substrate for nearinfrared intersubband transition."
CLEO'95, p. 224, Baltimore, USA, 1995.
2. **T. Asano**, S. Noda, T. Abe, and A. Sasaki:
"Nearinfrared intersubband transitions in InGaAs/AlAs quantum wells on GaAs substrate."
1995 International Conference on Solid State Devices and Materials, pp. 118-120, Osaka, Japan, Aug. 21-24, 1995.
3. **T. Asano**, S. Noda, T. Abe, and A. Sasaki:
"Relaxation time and dipole moment of short wavelength intersubband transition in InGaAs/AlAs Qws."
3rd International Workshop on Femt Second Technology, 96-52, Tukuba, Japan, Feb. 22, 1996.
4. **T. Asano**, S. Noda, T. Abe, and A. Sasaki:
"Ultrafast relaxation Time of short wavelength intersubband transition in quantum wells - possible application to ultrafast all optical modulation-"
1996 International Conference on Photonics in Switching, PWD4, Sendai, Japan, Apr. 24, 1996.
5. T. Suzuki, T. Mituyu, K. Nishi, H. Ohyama, T. Tomimasu, S. Noda, **T. Asano**, and A. Sasaki:
"Observation of Ultrafast Interband-Light Modulation by Intersubband-Light in n-Doped Quantum Wells by Using Free Electron Laser."
IEEE Lasers and Electro-Optics Society, Boston, USA, 1996.
6. T. Suzuki, T. Mituyu, K. Nishi, H. Ohyama, T. Tomimasu, S. Noda, **T. Asano**, and A. Sasaki:
"Measurement of ultrafast all-optical modulation in semiconductor quantum wells by using free electron laser."
18th International FEL conf. and 3rd FEL Users' Workshop, Roma, Italy, 1996
7. S. Noda, **T. Asano**, and A. Sasaki:
"Ultrafast Interband-Resonant Light Modulation by Intersubband-Resonant Light in Quantum Wells."
4th International Workshop on Femt Second Technology, 28, Tukuba, Japan, 1997.
8. **T. Asano**, S. Noda, T. Abe, and A. Sasaki:
"Absorption Magnitude and Phase Relaxation Time in Short Wavelength Intersubband Transition in InGaAs/AlAs Quantum Wells on a GaAs Substrate."
8th International Conference on Modulated Semiconductor and Semimetals, p 30, Santa Barbara, USA, Jul. 14, 1997.

国内学会発表

1. 浅野卓、室本純孝、野田進、佐々木昭夫:
「量子井戸の3準位を用いた光制御光変調(VI)-選択不純物添加のサブバンド間共鳴エネルギーに与える影響-」
応用物理学会 93 年 9 月、北海道大学、29aZX10.
2. 浅野卓、野田進、佐々木昭夫:
「サブバンド間遷移短波長化のための GaAs 基板上の InGaAs/AlAs 量子井戸の作製と評価」
応用物理学会 94 年 9 月、名城大学、22pT8.
3. 浅野卓、野田進、佐々木昭夫:
「サブバンド間遷移短波長化のための GaAs 基板上 InGaAs/AlAs 量子井戸の研究」
電通学会電子材料研究会 94 年 11 月、京都大学、信学技報, ED 94-88 CPM94-84, pp. 25-32, 1994.
4. 浅野卓、阿部友紀、野田進、佐々木昭夫:
「サブバンド間遷移短波長化のための GaAs 基板上 InGaAs/AlAs 量子井戸の作製と評価(II)」
応用物理学会 95 年 3 月、東海大学湘南校舎、28pZK5.
5. 野田進、浅野卓、佐々木昭夫:
「量子井戸におけるサブバンド間光によるバンド間光の変調一無添加および n 型量子井戸における屈折率変化の比較」
応用物理学会 95 年 3 月、東海大学湘南校舎、29pZP8.
6. 浅野卓、阿部友紀、野田進、佐々木昭夫:
「サブバンド間遷移短波長化のための GaAs 基板上 InGaAs/AlAs 量子井戸の作製と評価(III)」
応用物理学会 95 年 8 月、金沢工業大学、28aZM9.
7. 浅野卓、阿部友紀、野田進、佐々木昭夫:
「短波長サブバンド間遷移における吸収飽和の観測」
応用物理学会 95 年 8 月、金沢工業大学、28aZM10.
8. 浅野卓、阿部友紀、野田進、佐々木昭夫:
「8 バンドモデルによる短波長サブバンド間遷移における双極子モーメントの計算」
応用物理学会 96 年 3 月、東洋大学浅香校舎 28aX5.
9. 鈴木敏司、三露常男、西和久、大山秀明、冨増多喜夫、浅野卓、野田進、佐々木昭夫:
「自由電子レーザによる量子井戸光制御光変調の評価(I) 変調特性」
応用物理学会 96 年 9 月、九州産業大学.
10. 鈴木敏司、三露常男、西和久、大山秀明、冨増多喜夫、浅野卓、野田進、佐々木昭夫:
「自由電子レーザによる量子井戸光制御光変調の評価(II) 波長依存性」

応用物理学会 96 年 9 月、九州産業大学.

11. 浅野 卓、野田 進、佐々木 昭夫:

「量子井戸のサブバンド間遷移を用いた超高速光一光変調」

電通学会フォトニックスイッチング研究会 96 年 10 月、亀岡湯の花温泉 PS96-26,
pp.31-35, 1996.

12. 浅野 卓、野田 進、佐々木 昭夫:

「量子井戸のサブバンド間遷移を用いた超高速光制御光変調」

電通学会ソサイエティ大会 96 年 10 月、金沢大学、SC-4-10.

- 13 浅野 卓、野田 進、佐々木 昭夫:

「短波長サブバンド間遷移におけるサブバンド間吸収量増強の研究」

応用物理学会 97 年 3 月、日本大学船橋校舎、28aZA2.

14. 浅野 卓、野田 進、佐々木 昭夫:

「量子効果超高速光一光変調デバイス」

電通学会ソサイエティ大会 97 年 6 月、早稲田大学新宿校舎、SC-8-7、1997.

15. 浅野 卓、野田 進、佐々木 昭夫:

「短波長化サブバンド間遷移におけるエネルギー緩和時間の検討」

応用物理学会 97 年 10 月、秋田大学手形校舎、ZFp2.

16. 浅野 卓、野田 進、佐々木 昭夫:

「 n 型量子井戸における位相緩和時間の計算」

応用物理学会 97 年 10 月、秋田大学手形校舎、ZFp3.